

524,720

10/524720

Acc PCT/PTO 16 FEB 2005

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2004年3月4日 (04.03.2004)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2004/019438 A1

(51) 国際特許分類7: H01M 8/02, 8/10

(21) 国際出願番号: PCT/JP2003/010498

(22) 国際出願日: 2003年8月20日 (20.08.2003)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:

特願2002-244288 2002年8月23日 (23.08.2002) JP
特願2003-3191 2003年1月9日 (09.01.2003) JP

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 本田技研工業株式会社 (HONDA GIKEN KOGYO KABUSHIKI KAISHA) [JP/JP]; 〒107-8556 東京都港区南青山二丁目1番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 西好次 (NISHI, Yoshitsugu) [JP/JP]; 〒350-1381 埼玉県狭山市新狭山1丁目10番地1 ホンダエンジニアリング株式会社内 Saitama (JP). 石黒 順一 (ISHIGURO, Kenichi) [JP/JP]; 〒350-1381 埼玉県狭山市新狭山1丁目10番地1 ホンダエンジニアリング株式会社内 Saitama (JP).

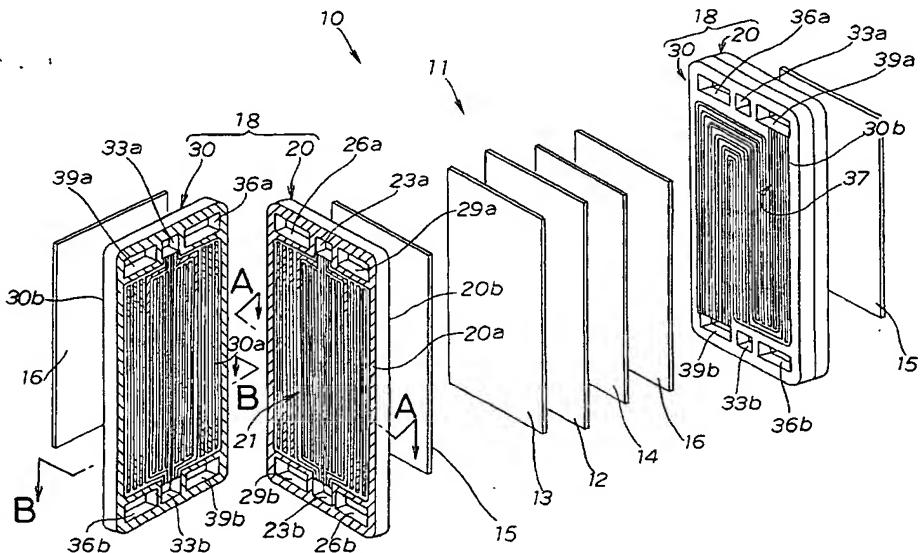
(74) 代理人: 下田容一郎, 外 (SHIMODA, Yo-ichiro et al.); 〒107-0052 東京都港区赤坂1丁目1番12号 明産溜池ビル Tokyo (JP).

(81) 指定国(国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU,

[統葉有]

(54) Title: FUEL CELL SEPARATOR AND ITS MANUFACTURING METHOD

(54) 発明の名称: 燃料電池用セパレータ及びその製造方法



WO 2004/019438 A1

(57) Abstract: Fuel cell separators (18) sandwich an anode (13) and a cathode (14) which are installed along both sides of an electrolyte film (12) and diffusion layers (15, 16). The separators (18) are made of a mixture material containing a thermoplastic resin selected from ethylene-vinyl acetate copolymers and ethylene-ethyl acrylate copolymers and carbon particles selected from at least one of Ketjenblack, graphite, and acetylene black. Since the thermoplastic resin is excellent in especially flexibility, the contact surfaces of the separators (18) in contact with the diffusion layers (15, 16) can be a portion excellent in sealability by adding the thermoplastic resin excellent in flexibility to the separators (18).

(57) 要約: 燃料電池用セパレータ(18)は、電解質膜(12)に沿わせたアノード(13)及びカソード(14)を拡散層(15,16)を介して両側から挟み込むものである。この燃料電池用セパレータ(18)を、エチレン・酢ビ共重合体、エチレン・エチルアクリレート共重合体から選択した熱可塑

[統葉有]

Best Available Copy



LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR),

OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

性樹脂と、ケッテンブラック、黒鉛、アセチレンブラックの少なくとも一種から選択した炭素粒子とを含んだ混合材で形成したものである。上記熱可塑性樹脂は、特に柔軟性に優れているので、柔軟性に優れた熱可塑性樹脂をセパレータ(18)に含ませることで、拡散層(15,16)に接触するセパレータ(18)の接触面をシール性に優れた部位にする。

明 細 書

燃料電池用セパレータ及びその製造方法

技術分野

本発明は、燃料電池及びその製造方法に関し、電解質膜にアノード及びカソードを添わせ、これらを両側から挟持することによりセルモジュールを構成する燃料電池用セパレータ及びその製造方法に関する。

背景技術

燃料電池は、水の電気分解の逆の原理を利用し、水素と酸素とを反応させて水を得る過程で電気を得る電池である。一般に、水素に燃料ガスを置き換え、酸素に空気や酸化剤ガスを置き換えるので、燃料ガス、空気、酸化剤ガスの用語を使用することが多い。以下に、一般的な燃料電池を図15に基づいて説明する。

図15に示されるように、燃料電池200は、電解質膜201にアノード202及びカソード203を添わせ、これらの電極202、203を拡散層204、205を介して第1セパレータ206及び第2セパレータ207で挟むことでセルモジュールを構成する。このセルモジュールを多数個積層することで燃料電池を得る。

アノード202には燃料ガスを効果的に接触させる必要がある。このため、第1セパレータ206の面206aに溝（図示せず）を多数本条設し、第1セパレータ206の面206aに拡散層204を重ねて溝を塞ぐことにより、燃料ガスの流路となる第1流路（図示せず）を形成する。

カソード203には酸化剤ガスを効果的に接触させる必要がある。このため、第2セパレータ207の面207aに溝208…を多数本条設し、第2セパレータ207の面207aに拡散層205を重ねて溝208…を塞ぐことにより、酸化剤ガスの流路となる第2流路（図示せず）を形成する。

また、第1セパレータ206は、面206aと反対側の面206bに冷却水通路用溝209…を多数本条設し、第2セパレータ207は、面207aと反対

側の面 207b に冷却水通路用溝（図示せず）を多数本条設ける。第1、第2セパレータ 206、207 を重ね合わせることで、それぞれの冷却水通路用溝 209…を合わせて冷却水通路（図示せず）を形成する。

この第1、第2のセパレータ 206、207 を製造する方法として、例えば日本国特許公開公報 JP-A-2001-126744 「燃料電池用セパレータおよびその製造方法」が知られている。

この公報の製造方法によれば、熱可塑性樹脂に導電性粒子を含めた状態で加熱混練し、この混練物を押し出し成形し、圧延ロールで長尺シートに成形し、この長尺シートを所定寸法に切断してブランク材とした後、このブランク材の両面、或いは片面にガス通路や冷却水通路用の溝をスタンピング成形することにより第1、第2セパレータ 206、207を得る。

第1、第2セパレータ 206、207 にそれぞれ拡散層 204、205 を重ね合わせて第1、第2流路を形成するためには、第1、第2セパレータ 206、207 のそれぞれの面 206a、207a に拡散層 204、205 を密着状態に重ね合わせる必要がある。しかしながら、第1、第2セパレータの 206、207 の面 206a、207a に拡散層 204、205 を密着状態に重ね合わせることは難しく、また、第1、第2セパレータの面 206a、207a と拡散層 204、205との間に部分的に隙間が発生する虞がある。

また、第1セパレータ 206 と第2セパレータ 207 とを重ね合わせることで、両者間に冷却水通路を形成するため、第1セパレータ 206 と第2セパレータ 207 とを密着状態に重ね合わせる必要がある。しかしながら、第1セパレータ 206 と第2セパレータ 207 とを密着状態に重ね合わせることは難しく、第1セパレータ 206 と第2セパレータ 207 との間に部分的に隙間が発生する虞がある。

このため、第1、第2セパレータ 206、207 のそれぞれの面 206a、207a と拡散層 204、205 とを密着状態に重ね合わせることができ、さらに第1セパレータ 206 と第2セパレータ 207 とを密着状態に重ね合わせることができる燃料電池用セパレータの開発が望まれていた。

また、従来の燃料電池用セパレータの製造方法は、長尺シートを所定寸法に切

断してブランク材とした後、それぞれのブランク材にガス通路用の溝や冷却水流路用の溝を成形するものである。この燃料電池用セパレータの製造方法によれば、ブランク材に溝を成形する際に、各々のブランク材を正規の位置に位置決めする必要がある。よって、ブランク材の位置決めに時間がかかり、そのことが生産性を上げる妨げになっていた。このため、燃料電池用セパレータをより効率よく成形することができる製造方法の開発が望まれていた。

燃料電池のなかには、例えば日本国特許公開公報JP-A-2002-97375「熱可塑性樹脂組成物及び成形品」に示されるように、燃料電池用セパレータの組成物として熱可塑性樹脂に炭素繊維やカーボンナノチューブを配合したものが知られている。以下、この公報の内容を詳しく説明する。

セパレータを燃料電池に組み込んだ際に、その両面にガス流路用の溝や冷却水流路用の溝を複数本成形する必要がある。このため、セパレータの素材は成形性に優れたものを使用する必要がある。加えて、セパレータは電極からの集電機能が要求され、導電性に優れている必要がある。この要求を満足させるため、この公報では、セパレータの組成物として、成形性に優れたポリフェニレンサルファイド（熱可塑性樹脂）を使用するとともに、導電性に優れた炭素繊維やカーボンナノチューブを使用することにした。

一例を詳しく説明すると、セパレータの組成物として炭素繊維を30wt%、カーボンナノチューブを0.5wt%、ポリフェニレンサルファイド（熱可塑性樹脂）を69.5wt%準備し、これらを混合することにより混合物を得た。その後、この混合物を素材としてセパレータを射出成形した。

熱可塑性樹脂であるポリフェニレンサルファイドを69.5wt%使用することにより、射出成形性を確保できる。さらに、炭素繊維を30wt%使用するとともに、カーボンナノチューブを0.5wt%使用することである程度の導電性を確保する。

しかし、上記公報では、素材に多量の炭素繊維を含有しているので、炭素繊維の配向性が顕著に発生し、セパレータは異方性になる。よって、セパレータに反りや変形が発生する虞がある。

また、セパレータのように両面にガス流路用の溝や冷却水流路用の溝がある場

合には、ウエルドラインができやすい。このため、セパレータの強度が極端に低下して破損する虞がある。

さらに、上記公報では、セパレータの導電性を高めるため、セパレータの素材に炭素繊維やカーボンナノチューブを含有させている。しかし、炭素繊維をセパレータの素材に含有させても、導電性を十分に上げることは難しい。

具体的には、上記公報では、体積抵抗率を二重リング方式（ASTM D 257）で測定している。しかし、二重リング方式は、高抵抗領域の測定に適しており、本発明者の測定結果では、低抵抗領域の測定に適した四探針法と比較して体積抵抗率がかなり低くでることが判った。

加えて、近年燃料電池は高い性能が要求されており、この要求を満足させるために、より導電性に優れたセパレータの実用化が望まれている。

発明の開示

本発明は、第1の面において、電解質膜に沿わせたアノード及びカソードを拡散層を介して両側から挟み込む燃料電池用セパレータであって、エチレン・酢ビ共重合体、エチレン・エチルアクリレート共重合体から選択した熱可塑性樹脂と、ケッテンブラック、黒鉛、アセチレンブラックの少なくとも一種から選択した炭素粒子とを含む混合材で形成された燃料電池用セパレータを提供する。

エチレン・酢ビ共重合体およびエチレン・エチルアクリレート共重合体は、熱可塑性樹脂のなかでも特に柔軟性に優れている。このような柔軟性に優れた熱可塑性樹脂をセパレータに含ませることで、拡散層に接触するセパレータの接触面に弾力性を備え、接触面をシール性に優れた部位とする。このため、セパレータの接触面と拡散層との重ね合わせ部を密に保つことができる。したがって、セパレータの接触面と拡散層との間にシール材を塗布する必要はない。

また、セパレータに、エチレン・酢ビ共重合体、エチレン・エチルアクリレート共重合体から選択した熱可塑性樹脂を含ませるだけで、セパレータの接触面をシール性に優れた部位に変える。これにより、シール性に優れたセパレータを効率よく生産することができる。

一方、ケッテンブラック、黒鉛やアセチレンブラックの炭素粒子は導電性を

備えており、これらの炭素粒子をセパレータに含ませることにより、セパレータの導電性を確保する。

混合材は、熱可塑性樹脂の割合を14～20wt%、炭素粒子の割合を80～86wt%とするのが好ましい。

熱可塑性樹脂の割合を14～20wt%に設定した理由は次の通りである。即ち、熱可塑性樹脂の含有量が14wt%未満になると、熱可塑性樹脂の含有量が少なすぎてセパレータの接触面の弾力性、すなわちシール性を確保することが難しくなる。一方、熱可塑性樹脂の含有量が20wt%を超えると、セパレータに含む炭素粒子の含有量が少なくなり、セパレータの導電性を十分に確保することが難しくなる。そこで、熱可塑性樹脂の含有量を14～20wt%に設定して、セパレータのシール性を確保するとともに、セパレータの導電性を十分に確保することとした。

炭素粒子のうち、3～20wt%をケッテンブラックとするのが望ましい。

ケッテンブラックは、他のカーボンブラックと比較して特に導電性に優れた部材であり、ケッテンブラックを含ませることでセパレータの導電性を高める。ケッテンブラックの含有量を3～20wt%に設定する理由は、ケッテンブラックの含有量が3wt%未満になると、ケッテンブラックの含有量が少なすぎて、ケッテンブラックを含ませた効果を得ることが難しくなる。このため、ケッテンブラックの含有量が3wt%未満ではセパレータの導電性を十分に確保することができない虞がある。

一方、ケッテンブラックの含有量が20wt%を超えると、ケッテンブラックの含有量が多すぎて混練しづらくなる。溶剤を添加することで混練を可能にすることも考えられるが、溶剤を使用することでコストが上がる虞がある。加えて、溶剤を添加して混練できたとしても、ケッテンブラックを含んだ混練物は流れ性が悪く、例えば成形の際に所定の形状を得ることが難しい。

そこで、ケッテンブラックの含有量を3～20wt%に設定することで、セパレータの導電性を十分に確保し、さらに混練の容易化を図るとともに成形性を好適に確保するようにした。

混合材は、好ましくは、熱可塑性樹脂を14～20wt%、炭素粒子を70～

83. 5 wt %、ガラス纖維又は炭素纖維を2.5～10 wt %の割合とする。

ガラス纖維又は炭素纖維を混合材に混合することで、セパレータの剛性を高める。ガラス纖維又は炭素纖維の含有量を2.5～10 wt %に設定した理由は、ガラス纖維又は炭素纖維の含有量が2.5 wt %未満になると、ガラス纖維又は炭素纖維の含有量が少なすぎてセパレータの剛性を高めることが難しくなる。一方、ガラス纖維又は炭素纖維の含有量が10 wt %を超えると、ガラス纖維又は炭素纖維の含有量が多すぎて混合材中にガラス纖維又は炭素纖維を均一に分散することが難しく、混合材の押出成形やプレス成形などが困難になる。そこで、ガラス纖維又は炭素纖維の含有量を2.5～10 wt %に設定し、ガラス纖維又は炭素纖維の含有量を確保してセパレータの剛性を高めるとともに、ガラス纖維又は炭素纖維を均一に分散して成形性に優れた混合材を得ることで生産性を高めることとした。

本発明は、第2の面において、熱可塑性樹脂をエチレン・酢ビ共重合体、エチレン・エチルアクリレート共重合体から選択するとともに、炭素粒子をケッテンブラック、黒鉛、アセチレンブラックから少なくとも一種選択する工程と、これらの選択した熱可塑性樹脂及び炭素粒子を混合して混合材を得る工程と、この混合材を押し出し機で押し出し成形してシート材を得る工程と、このシート材をプレス成形してガス流路溝を表面に成形する工程と、このガス流路溝を成形したシート材を所定形状に切断して燃料電池用セパレータを得る工程と、から成る燃料電池用セパレータの製造方法を提供する。

混合材をシート材とした状態で、その表面にガス流路溝をプレス成形した後、シート材を所定形状に切断してセパレータを得る。このように、ガス流路溝をシート材の状態でプレス成形することで、ガス流路溝を連続的に効率よく成形して、セパレータの生産性を高めることができる。

本発明は、第3の面において、電解質膜に沿わせたアノード及びカソードを拡散層を介して両側から挟み込む燃料電池用セパレータであって、ポリフェニルサルファイドを10～34 wt %、黒鉛を65～80 wt %、およびケッテンブラックを1～10 wt %含む混合物で形成した燃料電池用セパレータを提供する。

セパレータに熱可塑性樹脂としてのポリフェニレンサルファイドを10～34wt%含ませた。ポリフェニレンサルファイドは成形性に優れ、かつ弾力性に優れた樹脂なので、セパレータを射出成形する際の成形性を高めるとともに、シール性に優れたセパレータを得る。これにより、セパレータの生産性や精度をより一層高めることができる。加えて、ポリフェニレンサルファイドは耐熱性に優れた樹脂なので、セパレータにポリフェニレンサルファイドを含ませることで、セパレータの耐熱性を高める。このため、比較的高温の領域で使用する燃料電池への適用が可能になり、用途の拡大を図ることができる。

ポリフェニレンサルファイドの含有量を10～34wt%に設定した理由は次の通りである。即ち、ポリフェニレンサルファイドの含有量が10wt%未満になると、ポリフェニレンサルファイドの含有量が少なすぎて、セパレータの成形性やセパレータの接触面の弾力性、すなわちシール性を確保することが難しくなる。さらに、含有量が10wt%未満になると、セパレータの耐熱性を確保することや、結合剤として働きを発揮させることが難しい。一方、ポリフェニレンサルファイドの含有量が34wt%を超えると、セパレータに含む黒鉛の含有量が少なくなり、セパレータの導電性を十分に確保することが難しくなる。そこで、ポリフェニレンサルファイドの含有量を10～34wt%に設定して、セパレータの成形性、シール性、耐熱性や結合性を確保するとともに、十分な導電性を確保することにした。

さらに、セパレータに黒鉛を65～80wt%含ませることで、導電性を高める。

黒鉛の含有量を65～80wt%に設定した理由は次の通りである。即ち、黒鉛の含有量が65wt%未満になると、黒鉛の含有量が少なすぎて、セパレータの導電性を高めることが難しくなる。一方、黒鉛の含有量が80wt%を超えると、黒鉛の含有量が多すぎて黒鉛を均一に分散することが難しく、押出成形やプレス成形が困難になる。そこで、熱可塑性樹脂の含有量を65～80wt%に設定して、セパレータの導電性を確保するとともに、成形性を確保することにした。また、黒鉛の含有量を65wt%以上に確保することで、セパレータの体積抵抗率を低減させて、セパレータの導電性を十分に高めることができる。加えて、セ

パレータにケッテンブラックを1～10wt%含ませることで、導電性をより一層高めることができる。

ケッテンブラックは、他のカーボンブラックと比較して特に導電性に優れた部材であり、セパレータにケッテンブラックを含ませることでセパレータの導電性をより一層高めることができる。

ケッテンブラックの含有量を1～10wt%に設定した理由は次の通りである。即ち、ケッテンブラックの含有量が1wt%未満になると、ケッテンブラックの含有量が少なすぎて、セパレータの導電性を十分に確保することができない虞がある。一方、ケッテンブラックの含有量が10wt%を超えると、ケッテンブラックの含有量が多すぎて混練し難くなる。溶剤を添加することで混練を可能にすることも考えられるが、溶剤を使用することでコストが上がる虞がある。加えて、溶剤を添加して混練しても、ケッテンブラックを含んだ混練物は流動性が比較的悪く、例えば成形の際に所定の形状を得ることが難しい。そこで、ケッテンブラックの含有量を1～10wt%に設定することで、導電性をより一層高めることができる。

また、セパレータに含まれた黒鉛およびケッテンブラックは炭素粒子であり、セパレータに纖維質の物質を多量に含ませていない。よって、纖維質の物質によりセパレータに配向性が発生することを抑え、異方性によりセパレータに反りや変形が発生することを防止する。さらに、セパレータに纖維質の物質を多量に含ませていないので、セパレータに備えるガス流路用の溝や冷却水流路用の溝に、ウエルドラインが発生してセパレータの強度が低下することを防ぐ。

本発明の好ましい形態において、上記混合物は、チョップド炭素纖維を5～15wt%更に含み、この混合物に含まれる黒鉛は60～80wt%とされる。

セパレータにチョップド炭素纖維を5～15wt%含ませることにより、セパレータの強度や耐熱性を高める。チョップド炭素纖維を含めると、これが黒鉛の機能の一部を担うので、黒鉛含有量の下限値は60wt%であってもよい。

チョップド炭素纖維の含有量を5～15wt%に設定した理由は次の通りである。即ち、チョップド炭素纖維の含有量が5wt%未満になると、チョップド炭素纖維の含有量が少なすぎて、セパレータの強度や耐熱性を確保することが難し

くなる。一方、ショップド炭素繊維の含有量が 15 wt %を超えると、セパレータに含むショップド炭素繊維の含有量が多すぎてショップド炭素繊維の配向性が顕著に発生し、セパレータは異方性になる。よって、セパレータに反りや変形が発生する虞がある。また、セパレータのように両面にガス流路用の溝や冷却水流路用の溝がある場合には、ウエルドラインができやすい。このため、セパレータの強度が極端に低下して破損する虞がある。そこで、ショップド炭素繊維の含有量を 5 ~ 15 wt %に設定した。

ポリフェニレンサルファイドは、粘性が 20 ~ 80 ps i であるのが望ましい。

ポリフェニレンサルファイドの粘性を 20 ~ 80 ps i とすることで、ポリフェニレンサルファイドに黒鉛などを良好に混練して、セパレータの成形性をより一層高めることができる。

ポリフェニレンサルファイドの粘性を 20 ~ 80 ps i に設定した理由は次の通りである。即ち、ポリフェニレンサルファイドの粘性が 20 ps i 未満になると、粘性が低すぎてポリフェニレンサルファイドが固化せず、スラリー状になってしまう。一方、ポリフェニレンサルファイドの粘性が 80 ps i を超えると、ポリフェニレンサルファイドの粘性が高すぎてポリフェニレンサルファイドに黒鉛などを良好に混練することができない。そこで、ポリフェニレンサルファイドの粘性を 20 ~ 80 ps i に設定して、ポリフェニレンサルファイドに黒鉛などを良好に混練可能にし、かつセパレータの成形性をより一層高めるようにした。

図面の簡単な説明

図 1 は、本発明の第 1 実施例による燃料電池用セパレータの燃料電池を示す分解斜視図である。

図 2 は、図 1 の A-A 線断面図である。

図 3 は、図 1 の B-B 線断面図である。

図 4 は、図 1 の燃料電池用セパレータの断面図である。

図 5 は、本発明の第 1 実施例による燃料電池用セパレータの製造方法のフローチャートである。

図 6 A 及び図 6 B は、該製造方法において混合材をペレット状に形成する工

程を説明する図である。

図7は、該製造方法におけるプレス工程の説明図である。

図8は、本発明の第2実施例による燃料電池用セパレータの燃料電池を示す分解斜視図である。

図9は、図8のC-C線断面図である。

図10は、図8のD-D線断面図である。

図11は、図8の燃料電池用セパレータの断面図である。

図12は、体積抵抗率の求め方を説明した図である。

図13は、黒鉛の含有量と体積抵抗率との関係を示したグラフである。

図14は、ケッテンブラックの含有量と体積抵抗率との関係を示したグラフである。

図15は、従来の燃料電池を示す分解斜視図である。

発明を実施するための最良の形態

図1に示されるように、燃料電池10は、一例として電解質膜12に固体高分子電解質を使用し、この電解質膜12にアノード13及びカソード14を添わせ、アノード13側にアノード拡散層15を介してセパレータ18を合わせるとともに、カソード14側にカソード拡散層16を介してセパレータ（燃料電池用セパレータ）18を合わせることによりセルモジュール11を構成し、このセルモジュール11を多数個積層した固体高分子型燃料電池である。

セパレータ18は、第1セパレータ20と、第2セパレータ30とからなり、第1セパレータ20の冷却水通路形成面20aと第2セパレータ30の接合面30aを、一例として振動溶着法で接合したものである。

このように、第1、第2セパレータ20、30を振動溶着することにより、第1セパレータ20の冷却水通路用溝21…を第2セパレータ30で覆い、冷却水通路22…（図4参照）を形成する。

この冷却水通路22…には、第1、第2セパレータ20、30の上端中央の冷却水供給孔部23a、33aが連通するとともに、第1、第2セパレータ20、30の下端中央の冷却水排出孔部23b、33bが連通する。

第1セパレータ20は、燃料ガス通路形成面（接触面）20b側に燃料ガス通路用溝24…（図2参照）を備え、燃料ガス通路形成面20bにアノード拡散層15を重ね合わせることで、燃料ガス通路用溝24…をアノード拡散層15で塞いで燃料ガス通路25…（図4参照）を形成する。

この燃料ガス通路25…に、第1、第2セパレータ20、30の上端左側の燃料ガス供給孔部26a、36aを連通するとともに、第1、第2セパレータ20、30の下端右側の燃料ガス排出孔部26b、36bを連通する。

第2セパレータ30は、酸化剤ガス通路形成面（接触面）30b側に酸化剤ガス通路用溝37…を備え、酸化剤ガス通路形成面30bにカソード拡散層16を重ね合わせることで、酸化剤ガス通路用溝37…をカソード拡散層16で塞いで酸化剤ガス通路38…（図4参照）を形成する。

この酸化剤ガス通路38…に、第1、第2セパレータ20、30の上端右側の酸化剤ガス供給孔部29a、39aを連通するとともに、第1、第2セパレータ20、30の下端左側の酸化剤ガス排出孔部29b、39bを連通する。

第1、第2セパレータ20、30を形成する樹脂としては、エチレン・酢ビ（酢酸ビニル）共重合体、エチレン・エチルアクリレート共重合体から選択した熱可塑性樹脂と、ケッテンブラック、黒鉛、アセチレンブラックのうち少なくとも一種から選択した炭素粒子（炭素材料）と、ガラス纖維又は炭素纖維とを混合した混合材が該当する。

この混合材は、熱可塑性樹脂の割合が14～20wt%、炭素粒子の割合が80～86であり、炭素粒子80～86wt%のうちケッテンブラックを3～20wt%含ませたものである。

なお、ケッテンブラックは、導電性に優れたカーボンブラックで、一例としてケッテン・ブラック・インターナショナル株式会社製（販売元：三菱化学株式会社）のものが該当するが、これに限るものではない。

エチレン・酢ビ（酢酸ビニル）共重合体、エチレン・エチルアクリレート共重合体は、熱可塑性樹脂のなかで柔軟性のある樹脂あり、この樹脂を使用することで、第1、第2セパレータ20、30を柔軟性に優れた部材とする。

また、ケッテンブラック、黒鉛、アセチレンブラックは導電性に優れた材料

であり、炭素材料としてケッテンブラック、黒鉛、アセチレンブラックのうち少なくとも一種から選択した炭素粒子を使用することにより、第1、第2セパレータ20、30を通電性に優れた部材とする。

熱可塑性樹脂の割合を14～20wt%に設定した理由は以下の通りである。

熱可塑性樹脂の含有量が14wt%未満になると、熱可塑性樹脂の含有量が少なすぎて第1、第2セパレータ20、30の接触面の柔軟性、すなわち弾力性を確保することが難しい。

一方、熱可塑性樹脂の含有量が20wt%を超えると、熱可塑性樹脂の含有量が多すぎて所望の体積抵抗率(Ω・cm)を維持することが難しく、第1、第2セパレータ20、30の導電性を十分に確保することが困難になる。

そこで、熱可塑性樹脂の含有量を14～20wt%に設定して、第1、第2セパレータ20、30の弾力性を確保するとともに、十分な導電性を確保することとした。

また、炭素粒子の含有量を80～86wt%に設定した理由は以下の通りである。

炭素粒子の含有量が86wt%を超えると、炭素粒子の含有量が多すぎて炭素粒子を均一に分散することが難しく、押出成形やプレス成形が困難になる。したがって、炭素粒子の含有量を86wt%以下に設定することが好ましい。

また、炭素粒子の含有量は70wt%以上に確保することで、第1、第2セパレータ20、30の体積抵抗率(Ω・cm)を低減させて、第1、第2セパレータ20、30の導電性を十分に高める。このため、炭素粒子の含有量を70wt%以上に確保することが好ましい。

しかしながら、第1、第2セパレータ20、30には14～20wt%の熱可塑性樹脂が含有されているので、第1実施例においては、炭素粒子の含有量を80wt%以上として、第1、第2セパレータ20、30の導電性を十分に確保することにした。

ところで、ケッテンブラックは、通常のカーボンブラックと比較して導電性に優れた炭素粒子である。このため、ケッテンブラックを使用することで、第1、第2セパレータ20、30の体積抵抗率(Ω・cm)を大幅に低減する。こ

のケッテンブラックの含有量を3～20wt%に設定した。

ケッテンブラックの含有量を3～20wt%に設定した理由は以下の通りである。

ケッテンブラックの含有量が3wt%未満になると、ケッテンブラックの含有量が少なすぎて、ケッテンブラックを含ませた効果を得ることが難しい。このため、ケッテンブラックの含有量が3wt%未満では第1、第2セパレータ20、30の導電性を十分に確保することができない虞がある。

一方、ケッテンブラックの含有量が20wt%を超えると、ケッテンブラックの含有量が多すぎて混練しづらくなる。溶剤を添加することで混練を可能にすることも考えられるが、溶剤を使用することでコストが上がる虞がある。

加えて、溶剤を添加して混練できたとしても、ケッテンブラックを含んだ混練物は流れ性が悪く、例えば成形の際に所定の形状を得ることが難しい。

そこで、ケッテンブラックの含有量を3～20wt%に設定することで、セパレータの導電性を十分に確保し、さらに混練の容易化を図るとともに成形性を好適に確保するようにした。

次に図2を参照するに、第1セパレータ20は、外形を略矩形状(図1参照)に形成した部材で、冷却水通路形成面20aに冷却水通路用溝21…を多数本条備え、燃料ガス通路形成面(接触面)20bに燃料ガス通路用溝24…を多数本条備える。

第1セパレータ20に、エチレン・酢ビ共重合体、エチレン・エチルアクリレート共重合体から選択した熱可塑性樹脂を含ませた。エチレン・酢ビ共重合体、エチレン・エチルアクリレート共重合体は、熱可塑性樹脂のなかで、特に柔軟性に優れている。

よって、これらの柔軟性に優れた熱可塑性樹脂を第1セパレータ20に含ませることで、燃料ガス通路形成面20bに弾力性を備える。

さらに、第1セパレータ20に、エチレン・酢ビ共重合体、エチレン・エチルアクリレート共重合体から選択した熱可塑性樹脂を含ませるだけで、燃料ガス通路形成面20bをシール性に優れた部位に変える。これにより、シール性に優れた第1セパレータ20を効率よく生産することができる。

図3に示されるように、第2セパレータ30は、図1に示すように略矩形状に形成した部材で、接合面30aを平坦に形成し、酸化剤ガス通路形成面(接触面)30bに酸化剤ガス通路用溝37…を多数本条備える。

第2セパレータ30に、エチレン・酢ビ共重合体、エチレン・エチルアクリレート共重合体から選択した熱可塑性樹脂を含ませた。エチレン・酢ビ共重合体、エチレン・エチルアクリレート共重合体は、熱可塑性樹脂のなかで、特に柔軟性に優れている。

よって、これらの柔軟性に優れた熱可塑性樹脂を第2セパレータ30に含ませることで、酸化剤ガス通路形成面30bに弾力性を備える。

さらに、第2セパレータ30に、エチレン・酢ビ共重合体、エチレン・エチルアクリレート共重合体から選択した熱可塑性樹脂を含ませるだけで、酸化剤ガス通路形成面30bをシール性に優れた部位に変える。これにより、シール性に優れた第2セパレータ30を効率よく生産することができる。

次に、セパレータ18に電極拡散層15、16を重ね合わせた状態を示す図4を参照する。

セパレータ18は、第1、第2セパレータ20、30を重ね合わせた後に第1、第2セパレータ20、30に加圧力をかけ、第1、第2セパレータ20、30の一方を振動させて摩擦熱を発生させることにより、第1セパレータ20の冷却水通路形成面20aと、第2セパレータ30の接合面30aとを振動溶着し、第1セパレータ20の冷却水通路用溝21を第2セパレータ30で塞いで冷却水通路22を形成したものである。

燃料ガス通路形成面20bにアノード拡散層15を合わせることで、燃料ガス通路用溝24…及びアノード拡散層15で燃料ガス通路25…を形成する。

ここで、第1セパレータ20に、柔軟性に優れた熱可塑性樹脂を含ませることで、燃料ガス通路形成面20bに弾力性を備えることができ、燃料ガス通路形成面20bをシール性に優れた部位にする。

このため、燃料ガス通路形成面20bとアノード拡散層15との重ね合わせ部を密に保つ。よって、燃料ガス通路形成面20bとアノード拡散層15との間にシール材を塗布する必要がない。

したがって、部品点数を減らすとともにシール材を塗布する手間を省き、さらに燃料ガス通路形成面 20 b 及びアノード拡散層 15 間の接触抵抗を抑えて燃料電池の出力を高め得る。

また、酸化剤ガス通路形成面 30 b にカソード拡散層 16 を合わせることで、酸化剤ガス通路用溝 37 … 及びカソード拡散層 16 で酸化剤ガス通路 38 … を形成する。

ここで、第 2 セパレータ 30 に、柔軟性に優れた熱可塑性樹脂を含ませることで、酸化剤ガス通路形成面 30 b に弾力性を備えることができ、酸化剤ガス通路形成面 30 b をシール性に優れた部位にする。

このため、酸化剤ガス通路形成面 30 b とカソード拡散層 16 との重ね合わせ部を密に保つ。よって、酸化剤ガス通路形成面 30 b とカソード拡散層 16 との間にシール材を塗布する必要がない。

したがって、部品点数を減らすとともにシール材を塗布する手間を省き、さらに酸化剤ガス通路形成面 30 b 及びカソード拡散層 16 間の接触抵抗を抑えて燃料電池の出力を高め得る。

次に、本発明に係る燃料電池用セパレータの製造方法で第 1 セパレータ 20 を成形する例を図 5 乃至図 7 に基づいて説明する。

図 5 は、本発明の第 1 実施例による燃料電池用セパレータの製造方法のフローチャートである。図中、ST ×× はステップ番号を表す。

ST 10 ; 熱可塑性樹脂と導電性材料とを混練することにより混合材を得る。

ST 11 ; 混練した混合材を押し出し成形することにより帯状のシートを成形する。

ST 12 ; この帯状のシートの一方の面、すなわち冷却水通路形成面に相当する面に冷却水通路用溝をプレス成形するとともに、帯状のシートの他方の面、すなわち燃料ガス通路形成面に相当する面に燃料ガス通路用溝をプレス成形することにより、セパレータ素材を得る。

ST 13 ; セパレータ素材を所定寸法に切断することにより第 1 セパレータを得る。

以下、図 6 A 乃至図 8 を参照して、上記製造方法の ST 10 ~ ST 13 を詳し

く説明する。

図6A及び図6Bは、該製造方法において混合材をペレット状に形成する工程を説明する図である。具体的には、図6AはST10を示し、図6BはST11の前半を示す。

図6Aにおいて、先ず、エチレン・酢ビ共重合体、エチレン・エチルアクリレート共重合体、直鎖状低密度ポリエチレンから選択した熱可塑性樹脂46を準備する。

次に、黒鉛、ケッテンブラック、アセチレンブラックの炭素粒子から少なくとも一種を選択した導電性材料45を準備する。

準備した熱可塑性樹脂46及び導電性材料45を混練装置47の容器48に矢印の如く投入する。投入した熱可塑性樹脂46及び導電性材料45を、混練羽根(又はスクリュー)49を矢印の如く回転することにより容器48内で混練する。

図6Bにおいて、混練した混合材50を第1押出し成形装置51のホッパー52に投入し、投入した混合材50を第1押出し成形装置51で押出し成形する。押出し成形した成形材53を水槽54に通すことで、水槽54内の水55で成形材53を冷却する。

冷却した成形材53をカッターライン56のカッター57で所定の長さに切断して、切断したペレット58…をストック籠59にストックする。

図7は、上記製造方法におけるプレス工程の説明図であり、詳しくは、ST11の後半～ST13を示す。

前工程で得たペレット58…を第2押出し成形装置60のホッパー61に矢印の如く投入し、投入したペレット58…を第2押出し成形装置60で押出し成形する。押出し成形した成形材62を圧延ロール63で圧延して帯状のシート64を成形する。

圧延ロール63の下流側にはプレス装置65を備え、このプレス装置65は、帯状のシート64の上下にそれぞれ上下のプレス型66、67を備える。

上プレス型66は、帯状のシート64の他方の面64bに対向するプレス面66aを備え、このプレス面66aに凹凸部(図示せず)を備える。プレス面66aの凹凸部は、帯状のシート64の他方の面64bに、燃料ガス通路用溝24…

・(図4参照)をプレス成形するものである。

一方、下プレス型67は、帯状のシート64の一方の面64aに対向するプレス面67aを備え、このプレス面67aに凹凸部(図示せず)を備える。プレス面67aの凹凸部は、帯状のシート64の一方の面64aに、冷却水通路用溝21…(図4参照)をプレス成形するものである。

上下のプレス型66, 67をプレス開始位置P1に配置し、上下のプレス型66, 67で帯状のシート64の両面64a, 64bを押圧し、この状態を維持しながら上下のプレス型66, 67を帯状のシート64の押出速度に合わせて矢印a, bの如く運動する。

よって、帯状のシート64の一方の面64a、すなわち冷却水通路形成面20a(図4参照)に相当する面に冷却水通路用溝21…をプレス成形するとともに、帯状のシート64の他方の面64b、すなわち燃料ガス通路形成面20b(図4参照)に相当する面に燃料ガス通路用溝24…をプレス成形する。これにより、帯状のシート64をセパレータ素材68に成形する。

上下のプレス型66, 67がプレス解除位置P2に到達すると、上下のプレス型66, 67を矢印c, dの如く帯状のシート64から離す方向に移動し、上下のプレス型66, 67が解除側の所定位置に到達した後、上下のプレス型66, 67を矢印e, fの如く上流側に向けて移動する。

上下のプレス型66, 67がプレス開始側の所定位置に到達した後、上下のプレス型66, 67を矢印g, hの如くプレス開始位置P1まで移動する。

以上上述した工程を順次繰り返すことにより、帯状のシート64の両面64a, 64bに冷却水通路用溝21…及び燃料ガス通路用溝24…をそれぞれプレス成形する。

図7においては、理解を容易にするために上下のプレス型66, 67をそれぞれ1個づつ備えた例について説明したが、現実には上下のプレス型66, 67をそれぞれ複数個備える。

上下のプレス型66, 67をそれぞれ複数個備えることで、帯状のシート64の両面64a, 64bに冷却水通路用溝21…及び燃料ガス通路用溝24…(図4参照)をそれぞれ連続的にプレス成形する。

なお、上下のプレス型 6 6, 6 7 には、図 1 に示す燃料ガス供給孔部 2 6 a 及び燃料ガス排出孔部 2 6 b を成形する部位を備える。また、上下のプレス型 6 6, 6 7 には、図 1 に示す酸化剤ガス供給孔部 2 9 a 及び酸化剤ガス排出孔部 2 9 b を成形する部位を備える。

さらに、上下のプレス型 6 6, 6 7 には、図 1 に示す冷却水供給孔部 2 3 a 及び冷却水排出孔部 2 3 b を成形する部位を備える。

よって、上下のプレス型 6 6, 6 7 で帯状のシート 6 4 の両面 6 4 a, 6 4 b に冷却水通路用溝 2 1 … 及び燃料ガス通路用溝 2 4 … をそれぞれ連続的にプレス成形するとともに、図 1 に示す冷却水供給孔部 2 3 a 及びガス供給孔部 2 6 a, 2 9 a や冷却水排出孔部 2 3 b 及びガス排出孔部 2 6 b, 2 9 b を同時に成形する。

プレス装置 6 5 の下流側には、前工程で得たセパレータ素材 6 8 の上方にカッタ装置 7 0 を備える。

このカッタ装置 7 0 のカッター 7 1 を矢印 i の如く下降することにより、セパレータ素材 6 8 を所定寸法に切断して第 1 セパレータ 2 0 … を得る。これにより、第 1 セパレータ 2 0 の製造工程を完了する。

このように、本発明に係る燃料電池用セパレータの製造方法によれば、混合材 5 0 を帯状のシート 6 4 とした状態で、その両面 6 4 a, 6 4 b に冷却水通路用溝 2 1 … 及び燃料ガス通路用溝 2 4 … をそれぞれプレス成形した後、シート 6 4 を所定形状に切断して第 1 セパレータ 2 0 を得る。

冷却水通路用溝 2 1 … 及び燃料ガス通路用溝 2 4 … をシート 6 4 の状態でプレス成形することで、冷却水通路用溝 2 1 … 及び燃料ガス通路用溝 2 4 … を連続的に効率よく成形することで、第 1 セパレータ 2 0 の生産性を高めることができる。

図 5 乃至図 7 では第 1 セパレータ 2 0 を成形する例について説明したが、第 1 セパレータ 2 0 の製造方法と同様の方法で第 2 セパレータ 3 0 を製造することが可能である。

但し、第 2 セパレータ 3 0 は、第 1 セパレータ 2 0 のように冷却水通路用溝 2 1 … (図 4 参照) を備えておらず、平坦な接合面 3 0 a を備えている。このた

め、図7に示す下プレス型67は、帯状のシート64の一方の面に対向する面に、帯状のシート64の一方の面に冷却水通路用溝21…をプレス成形する凹凸部を備える必要はない。

次に、第1実施例の変形例について説明する。

第1実施例では、第1、第2セパレータ20、30に含む熱可塑性樹脂の割合を14～20wt%、炭素粒子の割合を80～86wt%とした例について説明したが、第1実施例の変形例として、第1、第2セパレータ20、30に含む熱可塑性樹脂の割合を14～20wt%、炭素粒子の割合を70～83.5wt%、ガラス繊維又は炭素繊維の割合を2.5～10wt%とすることも可能である。

第1実施例の変形例の第1、第2セパレータ20、30は、ガラス繊維又は炭素繊維を混合材に混合することで、第1、第2セパレータ20、30の剛性を高めることができる。

ここで、ガラス繊維又は炭素繊維の含有量を2.5～10wt%に設定した理由は以下の通りである。

ガラス繊維又は炭素繊維の含有量が2.5wt%未満になると、ガラス繊維又は炭素繊維の含有量が少なすぎて第1、第2セパレータ20、30の剛性を高めることが難しい。

一方、ガラス繊維又は炭素繊維の含有量が10wt%を超えると、ガラス繊維又は炭素繊維の含有量が多すぎて混合材中にガラス繊維又は炭素繊維を均一に分散することが難しく、混合材の押出成形やプレス成形などが困難になる。

そこで、ガラス繊維又は炭素繊維の含有量を2.5～10wt%に設定して、第1、第2セパレータ20、30の剛性を高めるとともに、成形性に優れた混合材を得ることとした。

また、第1実施例の変形例において、炭素粒子の含有量を70～83.5wt%に設定した理由は以下の通りである。

炭素粒子の含有量が70wt%未満になると、炭素粒子の含有量が少なすぎて第1、第2セパレータ20、30の体積抵抗率(Ω・cm)を低減することが難しく、第1、第2セパレータ20、30の導電性を十分に確保することが難しい。

一方、上述したように、炭素粒子の含有量は86wt%を超えると、炭素粒子

の含有量が多すぎて炭素粒子を均一に分散することが難しく、押出成形やプレス成形が困難になる。したがって、炭素粒子の含有量を 8.6 wt % 以下に設定することが好ましい。

しかしながら、第 1、第 2 セパレータ 20、30 には 14~20 wt % の熱可塑性樹脂、2.5~10 wt % のガラス纖維又は炭素纖維が含有されているので、第 2 実施例においては、炭素粒子の含有量を 8.3.5 wt % 以下として、炭素粒子を均一に分散させて、押出成形やプレス成形を好適に実施可能にした。

このように、炭素粒子の含有量を 7.0~8.3.5 wt % に設定することで、体積抵抗率 ($\Omega \cdot \text{cm}$) を低減するとともに、成形性に優れた混合材を得る。

第 1 実施例の変形例の第 1、第 2 セパレータ 20、30 によれば、第 1 実施例と同様の効果を得ることができ、加えてガラス纖維又は炭素纖維を混合することで、第 1、第 2 セパレータ 20、30 の剛性を高める。

次に、第 2 実施例を図 8 乃至図 14 に基づいて説明する。なお、第 2 実施例において第 1 実施例と同一部材については同一符合を付して説明を省略する。

先ず、本発明の第 2 実施例による燃料電池用セパレータの燃料電池の分解斜視図を参照する。

第 2 実施例の燃料電池 110 は、セパレータ 118（第 1 セパレータ 120、第 2 セパレータ 130）が第 1 実施例の燃料電池 10 と異なるだけで、その他の構成は第 1 実施例の燃料電池 10 と同じである。

以下、セパレータ 118（第 1 セパレータ 120、第 2 セパレータ 130）について説明する。

第 1、第 2 セパレータ 120、130 は、ポリフェニレンサルファイドを 10~34 wt %、黒鉛を 60~80 wt %、ケッテンブラックを 1~10 wt %、およびチョップド炭素纖維を 5~15 wt % 含んだ混合物で形成したものである。

第 1、第 2 セパレータ 120、130 に熱可塑性樹脂としてのポリフェニレンサルファイドを 10~34 wt % 含ませた。ポリフェニレンサルファイドは成形性に優れ、かつ弾力性に優れた樹脂なので、第 1、第 2 セパレータ 120、130 を射出成形する際の成形性を高めるとともに、シール性に優れた第 1、第 2 セ

パレータ 120, 130 を得る。

これにより、第1、第2セパレータ 120, 130 の生産性や精度をより一層高める。

加えて、ポリフェニレンサルファイドは耐熱性に優れた樹脂なので、第1、第2セパレータ 120, 130 にポリフェニレンサルファイドを含ませることで、第1、第2セパレータ 120, 130 の耐熱性を高める。

このため、比較的高温の領域で使用する燃料電池への適用が可能になり、用途の拡大を図る。

ここで、ポリフェニレンサルファイドの含有量を 10 ~ 34 wt % に設定した理由は以下の通りである。

ポリフェニレンサルファイドの含有量が 10 wt % 未満になると、ポリフェニレンサルファイドの含有量が少なすぎて、第1、第2セパレータ 120, 130 の成形性や第1、第2セパレータ 120, 130 の接触面の弾力性、すなわちシール性を確保することが難しくなる。

さらに、含有量が 10 wt % 未満になると、第1、第2セパレータ 120, 130 の耐熱性を確保することや、結合剤として働きを発揮させることが難しい。

一方、ポリフェニレンサルファイドの含有量が 34 wt % を超えると、第1、第2セパレータ 120, 130 に含む黒鉛の含有量が少なくなり、第1、第2セパレータ 120, 130 の導電性を十分に確保することが難しくなる。

そこで、熱可塑性樹脂の含有量を 10 ~ 34 wt % に設定して、第1、第2セパレータ 120, 130 の成形性、シール性、耐熱性や結合性を確保するとともに、十分な導電性を確保することにした。

さらに、第1、第2セパレータ 120, 130 に黒鉛を 60 ~ 80 wt % 含ませることで導電性を高める。

黒鉛の含有量を 60 ~ 80 wt % に設定した理由は以下の通りである。

黒鉛の含有量が 60 wt % 未満になると、黒鉛の含有量が少なすぎて、第1、第2セパレータ 120, 130 の導電性を高めることができ難くなる。

一方、黒鉛の含有量が 80 wt % を超えると、黒鉛の含有量が多すぎて黒鉛を均一に分散することが難しく、押出成形やプレス成形が困難になる。

そこで、熱可塑性樹脂の含有量を60～80wt%に設定して、第1、第2セパレータ120、130の導電性を確保するとともに、成形性を確保することにした。

また、黒鉛の含有量を60wt%以上に確保することで、第1、第2セパレータ120、130の体積抵抗率(mΩ・cm)を低減させて、第1、第2セパレータ120、130の導電性を十分に高める。

一方、ポリフェニレンサルファイドの含有量が34wt%を超えると、第1、第2セパレータ120、130に含む黒鉛の含有量が少なくなり、第1、第2セパレータ120、130の導電性を十分に確保することが難しくなる。

そこで、熱可塑性樹脂の含有量を10～34wt%に設定して、第1、第2セパレータ120、130の成形性、シール性、耐熱性や結合性を確保するとともに、十分な導電性を確保することにした。

加えて、第1、第2セパレータ120、130にケッテンブラックを1～10wt%含ませることで、導電性をより一層高める。

ケッテンブラックは、他のカーボンブラックと比較して特に導電性に優れた部材であり、第1、第2セパレータ120、130にケッテンブラックを含ませることで第1、第2セパレータ120、130の導電性をより一層高める。

ここで、ケッテンブラックの含有量を1～10wt%に設定した理由は以下の通りである。

ケッテンブラックの含有量が1wt%未満になると、ケッテンブラックの含有量が少なすぎて、第1、第2セパレータ120、130の導電性を十分に確保することができない虞がある。

一方、ケッテンブラックの含有量が10wt%を超えると、ケッテンブラックの含有量が多すぎて混練しづらくなる。溶剤を添加することで混練を可能にすることも考えられるが、溶剤を使用することでコストが上がる虞がある。

加えて、溶剤を添加して混練できたとしても、ケッテンブラックを含んだ混練物は流動性が比較的悪く、例えば成形の際に所定の形状を得ることが難しい。

そこで、ケッテンブラックの含有量を1～10wt%に設定することで、第1、第2セパレータ120、130の導電性を十分に確保し、さらに混練の容易

化を図るとともに成形性を好適に確保することにした。

また、第1、第2セパレータ120、130に含ませた黒鉛およびケッテンブラックは炭素粒子であり、セパレータに纖維質の物質を多量に含ませていない。よって、纖維質の物質によりセパレータに配向性が発生することを抑え、異方性により第1、第2セパレータ120、130に反りや変形が発生することを防止する。

また、第1、第2セパレータ120、130に纖維質の物質を多量に含ませていないので、第1、第2セパレータ120、130に備えるガス流路用の溝や冷却水流路用の溝に、ウエルドラインが発生して第1、第2セパレータ120、130の強度が低下することを防ぐ。

加えて、第1、第2セパレータ120、130にチョップド炭素纖維を5～15wt%含ませることで、第1、第2セパレータ120、130の強度や耐熱性を高める。

ここで、チョップド炭素纖維の含有量を5～15wt%に設定した理由は以下の通りである。

チョップド炭素纖維の含有量が5wt%未満になると、チョップド炭素纖維の含有量が少なすぎて、第1、第2セパレータ120、130の強度や耐熱性を確保することが難しくなる。

一方、チョップド炭素纖維の含有量が15wt%を超えると、第1、第2セパレータ120、130に含むチョップド炭素纖維の含有量が多すぎてチョップド炭素纖維の配向性が顕著に発生し、第1、第2セパレータ120、130は異方性になる。よって、第1、第2セパレータ120、130に反りや変形が発生する虞がある。

また、第1、第2セパレータ120、130のように両面にガス流路用の溝や冷却水流路用の溝がある場合には、ウエルドラインができやすい。このため、第1、第2セパレータ120、130の強度が極端に低下して破損する虞がある。

そこで、チョップド炭素纖維の含有量を5～15wt%に設定して、第1、第2セパレータ120、130の強度や耐久性を確保することにした。

ここで、第1、第2セパレータ120、130に含ませたポリフェニレンサル

ファイドは、粘性を20～80 p s iに設定したものである。

ポリフェニレンサルファイドの粘性を20～80 p s iに設定した理由は以下の通りである。

ポリフェニレンサルファイドの粘性が20 p s i未満になると、粘性が低すぎて第1、第2セパレータ120、130の製造の際に、ポリフェニレンサルファイドが固化せず、スラリー状になってしまう。

一方、ポリフェニレンサルファイドの粘性が80 p s iを超えると、ポリフェニレンサルファイドの粘性が高すぎて第1、第2セパレータ120、130の製造の際に、ポリフェニレンサルファイドに黒鉛などを良好に混練することができない。

そこで、ポリフェニレンサルファイドの粘性を20～80 p s iに設定することで、ポリフェニレンサルファイドに黒鉛などを良好に混練するようにして、セパレータの成形性をより一層高めることにした。

なお、ポリフェニレンサルファイドの粘性の測定は、300°CにおいてMFR（メルトマスフローレイト）の試験方法（ASTM D1238）で測定したものである。

ここで、MFRとは、鉛直の金属シリンダ内にポリフェニレンサルファイドを充填し、このポリフェニレンサルファイドをおもりを載せたピストンで押圧してシリンダ先端のダイから押し出し、この際にピストンが所定距離移動する移動時間を測定し、この測定値に基づいて粘性を求める方法をいう。

次に、図9を参照するに、第1セパレータ120は、外形を略矩形状（図8参照）に形成した部材で、冷却水通路形成面20aに冷却水通路用溝21…を多数本条備え、燃料ガス通路形成面（接触面）20bに燃料ガス通路用溝24…を多数本条備える。

第1セパレータ120に、ポリフェニレンサルファイドを10～34 w t %含ませた。これにより、第1セパレータ120の成形性、シール性、耐熱性や結合性を確保するとともに、十分な導電性を確保する。

ここで、第1セパレータ120に含むチョップド炭素繊維は弾性率が高いので、チョップド炭素繊維の含有量が多すぎると、冷却水通路用溝21…を形成する

リブ140…内や、燃料ガス通路用溝24…を形成するリブ141…内にチョップド炭素繊維が入りきらず、チョップド炭素繊維とポリフェニレンサルファイドとの分離が起きやすくなる。

このため、リブ140…、141…はポリフェニレンサルファイドの含有量が他の部位と比較して多くなり、本来の性能を発揮することができなく虞がある。

そこで、チョップド炭素繊維の含有量を5～15wt%に抑えた。これにより、リブ140…、141…内にチョップド炭素繊維を好適に入り込ませて、リブ140…、141…を良好に形成する。

図10に示されるように、第2セパレータ130は、図8に示すように略矩形状に形成した部材で、接合面30aを平坦に形成し、酸化剤ガス通路形成面（接触面）30bに酸化剤ガス通路用溝37…を多数本条備える。

第2セパレータ130に、ポリフェニレンサルファイドを10～34wt%含ませた。これにより、第2セパレータ130の成形性、シール性、耐熱性や結合性を確保するとともに、十分な導電性を確保する。

ここで、第1セパレータ120と同様に、第2セパレータ130も、チョップド炭素繊維の含有量を5～15wt%に抑えたので、リブ142…内にチョップド炭素繊維を好適に入り込ませて、リブ142…を良好に形成する。

次に、セパレータ118に電極拡散層15、16を重ね合わせた状態を示す図11を参照する。

セパレータ118は、第1セパレータ120の冷却水通路形成面20aと、第2セパレータ130の接合面30aとを接合し、第1セパレータ120の冷却水通路用溝21を第2セパレータ130で塞いで冷却水通路22を形成したものである。

燃料ガス通路形成面20bにアノード拡散層15を合わせることで、燃料ガス通路用溝24…及びアノード拡散層15で燃料ガス通路25…を形成する。

このセパレータ118は、チョップド炭素繊維を5～15wt%含んでいるので、強度、弾性率、耐熱性をさらに高める。セパレータ118の強度を上げることで、燃料電池にセパレータ18を組み込む際の締付け強度を高める。

さらに、セパレータ118の弾性率や耐熱性を上げることで、高温時の耐ガス

圧性やクリープ強度を高め、高温領域でも燃料電池を好適に使用することが可能になる。

次に、図12において、体積抵抗率 ρ_v の求め方を説明する。先ず、試料150（幅をW、高さをt、長さをL）の体積抵抗率 ρ_v を四探針法（ASTM D 991）で求める例について説明する。

断面積が（W×t）の一端151から他端152に矢印の如く一定電流Iを流し、距離Lだけ離れた一端151側の電極と他端152側の電極との電極間の電位差Vを四探針法で測定する。

測定した電位差Vに基づいて次式で体積抵抗率 ρ_v を求める。

$$\text{体積抵抗率 } \rho_v = (V/I) \times (W/L) \times t$$

ここで、四探針法を採用する理由を説明する。

電位差Vを測定する際に、試料150の一定電流Iを流すと、試料150の一端151と電流電極との間に界面現象により接触抵抗と呼ばれる電圧降下が生じる。この接触抵抗の影響で抵抗Ω（V/I）が高く測定される。

そこで、四探針法を採用することで、接触抵抗を排除し、試料150の真の体積抵抗率 ρ_v を求める。

なお、電位差Vを測定する方法として、四探針法の他に二重リング方式（ASTM D 257）も知られている。

しかし、二重リング方式は、高抵抗領域の測定に適しており、本発明者の測定結果でも、四探針法と比較して体積抵抗率がかなり低く測定されることが判った。

以下、表1の実験例1、2に基づいて四探針法（ASTM D 991）および二重リング法（ASTM D 257）で求めた体積抵抗率について説明する。

- 27 -

表 1

| 配 合 組 成 | 密度 | | | 実験例 1 | | 実験例 2 | |
|-----------------------------|-------------------------------------|---------------------------|------|---------------------------|---------------------------|---------------------------|------------|
| | ポリフェニレン サルファイド | 粘性 60 psi 粘性 20 psi | 1.35 | 1.5 wt % | 1.5 wt % | 1.2.5 wt % | 1.2.5 wt % |
| 可塑剤(ポリマータイプ) | 0.95 | | | — | | 2.5 wt % | |
| 黒鉛 | 2.3 | | | 6.9 wt % | | 6.9 wt % | |
| ケッテンブラック | 1.8 | | | 1 wt % | | 1 wt % | |
| チヨップド炭素繊維(PAN系) | 1.75 | | | — | | 2.5 wt % | |
| 配合組成物の流動性 (スピアル・フロー・レシオ) | | | | 3.0 | | 4.5 | |
| 体積 抵抗率 | 四探針法(ASTMD991) 二重リング法(ASTM D257) | 0.57 mΩ·cm 0.155 mΩ·cm | | 0.57 mΩ·cm 0.155 mΩ·cm | 0.33 mΩ·cm 0.072 mΩ·cm | 0.33 mΩ·cm 0.072 mΩ·cm | |

表1に示すように、実験例1の試験片は、ポリフェニレンサルファイド（粘性60psi）を15wt%、ポリフェニレンサルファイド（粘性20psi）を15wt%、黒鉛（粒径100μm）を69wt%およびケッテンブラックを1wt%含んだものである。

この混合物の流動性は、スパイラル・フロー・レシオが30である。

実験例2の試験片は、ポリフェニレンサルファイド（粘性60psi）を12.5wt%、ポリフェニレンサルファイド（粘性20psi）を12.5wt%、可塑剤（ポリマータイプ）を2.5wt%、黒鉛（粒径100μm）を69wt%、ケッテンブラックを1wt%およびPAN系チップド炭素纖維を2.5wt%含んだものである。

この混合物の流動性は、スパイラル・フロー・レシオが45である。

スパイラル・フロー・レシオは、スパイラル・フロー試験で求めたレシオである。スパイラル・フロー試験とは、金型に形成した狭くて長い螺旋状の溝に、射出成形機で溶融樹脂を射出し、螺旋状の溝に流入した溶融樹脂の流入長から成形性を判断する試験をいう。

実験例1の試験片および実験例2の試験片の体積抵抗率を四探針法と二重リング法とで求めた。

二重リング法で求めた体積抵抗率は、実験例1が0.155mΩ・cm、実験例2が0.072mΩ・cmであった。

一方、四探針法で求めた体積抵抗率は、実験例1が0.57mΩ・cm、実験例2が0.33mΩ・cmであった。

このように、高抵抗領域に適した二重リング法で低抵抗領域の体積抵抗率を求めるに、四探針法と比較して体積抵抗率がかなり低くなることが判った。そこで、信頼性を高めるために体積抵抗率を四探針法で求めることにした。

次に、四探針法で求めた黒鉛およびケッテンブラックのそれぞれの含有量と体積抵抗率との関係を図13および図14で説明する。

図13のグラフにおいて、縦軸は体積抵抗率（mΩ・cm）を示し、横軸は黒鉛の含有量（wt%）を示す。

黒鉛の含有量が0のとき、体積抵抗率は約15000mΩ・cmであるが、

黒鉛の含有量が 60 w t % 以上になると体積抵抗率は小さくなることが判る。

よって、黒鉛の含有量が 60 w t % 以上になるように、好ましくは 65 w t % 以上になるように設定した。

図 14 のグラフにおいて、縦軸は体積抵抗率 ($m\Omega \cdot cm$) を示し、横軸はケッテンブラックの含有量 (w t %) を示す。

ケッテンブラックの含有量が 0 のとき、体積抵抗率は約 $3400 m\Omega \cdot cm$ であるが、ケッテンブラックの含有量が 1 w t % になると体積抵抗率は約 $500 m\Omega \cdot cm$ まで下がる。

さらに、ケッテンブラックの含有量が 2 になると、体積抵抗率は約 $300 m\Omega \cdot cm$ になり、ケッテンブラックの含有量が 3 w t % になると体積抵抗率は極めて小さくなることが判る。

よって、ケッテンブラックの含有量が 1 w t % 以上になるように設定した。

次に、試験例 1 ~ 3 および比較例 1 ~ 2 を表 2 に基づいて説明する。

セパレータ 118 に含有させるポリフェニレンサルファイドは、一例として出光石油化学株式会社製のものを使用し、黒鉛は、一例として日本黒鉛工業株式会社製のものを使用した。

また、ケッテンブラックは、一例としてケッテン・ブラック・インターナショナル株式会社製（販売元：三菱化学株式会社）の EC600JD（商品名）を使用し、チョップド炭素繊維は、一例として東レ株式会社製の PAN 系のものを使用した。

なお、ケッテン・ブラック・インターナショナル株式会社製の EC600JD（商品名）は、通常のケッテンブラックと比較して約 60 % の含有量で同等の導電性を確保する高級グレードの高導電性カーボンブラックである。

また、東レ株式会社製のチョップド炭素繊維は、直径 d が $7 \mu m$ 、長さが $3 m$ の炭素繊維である。

表 2

| | 試験例 1 | 試験例 2 | 試験例 3 | 比較例 1 | 比較例 2 |
|------------------------------|-------------------------------------------------|--------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|
| 配合組成 | ポリフエニレンド サルファイド (粘度 45 psi) 33.25 wt % | 30 wt % (粘度 45 psi) | 25 wt % (粘度 45 psi) | 35 wt % (粘度 80 psi) | 35 wt % (粘度 80 psi) |
| | 黒鉛 (粒径 100 μm) | 63 wt % (粒径 100 μm) | 67 wt % (粒径 100 μm) | 58 wt % (粒径 100 μm) | 62 wt % (粒径 100 μm) |
| | ケッチャック ブラック (EC 600 JD) | 2.85 wt % (EC 600 JD) | 2 wt % (EC 600 JD) | 3 wt % (EC 600 JD) | 2 wt % (EC 600 JD) |
| | チヨップド 炭素繊維 (PAN系) | 5 wt % (PAN系) | 5 wt % (PAN系) | 5 wt % (PAN系) | — |
| 配合組成物の流動性 (スパイラル・フロー・レシオ) | 40 | 45 | 60 | 62 | 50 |
| 体積抵抗率 | 72 mΩ・cm | 85 mΩ・cm | 60 mΩ・cm | 330 mΩ・cm | 98 mΩ・cm |
| 判定 | ○ | ○ | ○ | × | × |

- ポリフエニレンサルファイド : 出光石油化学(株)製
- 黒鉛 : 日本黒鉛工業(株)製
- ケッチャック・ブラック : ケッチャック・インターナショナル(株)製
- チヨップド炭素繊維 : 東レ(株)製

表2に示すように、試験例1は、ポリフェニレンサルファイド（粘性45 p s i）を33.25 w t %、黒鉛（粒径100 μm）を60 w t %、ケッテンブラックを2.85 w t %、およびチップド炭素繊維を5 w t %含んだものである。なお、この混合物の流動性は、スパイラル・フロー・レシオが40である。

試験例2は、ポリフェニレンサルファイド（粘性45 p s i）を30 w t %、黒鉛（粒径100 μm）を63 w t %、ケッテンブラックを2 w t %、およびチップド炭素繊維を5 w t %含んだものである。なお、この混合物の流動性は、スパイラル・フロー・レシオが45である。

試験例3は、ポリフェニレンサルファイド（粘性45 p s i）を25 w t %、黒鉛（粒径100 μm）を67 w t %、ケッテンブラックを3 w t %、およびチップド炭素繊維を5 w t %含んだものである。なお、この混合物の流動性は、スパイラル・フロー・レシオが60である。

比較例1は、ポリフェニレンサルファイド（粘性80 p s i）を35 w t %、黒鉛（粒径100 μm）を58 w t %、ケッテンブラックを2 w t %、およびチップド炭素繊維を5 w t %含んだものである。なお、この混合物の流動性は、スパイラル・フロー・レシオが62である。

比較例2は、ポリフェニレンサルファイド（粘性80 p s i）を35 w t %、黒鉛（粒径100 μm）を62 w t %、ケッテンブラックを3 w t %含んだものである。なお、この混合物の流動性は、スパイラル・フロー・レシオが50である。

試験例1～3および比較例1～2の試料を準備した後、図12で説明した四探針法でそれぞれの試料の体積抵抗率を求めた。

ここで、体積抵抗率が90 mΩ・cm以下であれば、セパレータ18（図1参照）に採用した際に十分な導電性を確保するとの見通しから、体積抵抗率のしきい値を90 mΩ・cmとし、求めた体積抵抗値が90 mΩ・cm以下の場合を評価○とし、求めた体積抵抗値が90 mΩ・cmを超えた場合を評価×とした。

その結果、試験例1は体積抵抗率が72 mΩ・cmと90 mΩ・cm以下に抑えることができたので、評価は○である。

また、試験例2は体積抵抗率が85 mΩ・cmと90 mΩ・cm以下に抑える

ことができたので、評価は○である。

さらに、試験例3は体積抵抗率が $60\text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$ と $90\text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$ 以下に抑えることができたので、評価は○である。

一方、比較例1は体積抵抗率が $330\text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$ と $90\text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$ を超えてしまうので、評価は×である。

また、比較例2は体積抵抗率が $98\text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$ と $90\text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$ を超えてしまうので、評価は×である。

なお、混合物の流動性は、成形性などを考慮すると、スパイラル・フロー・レシオで30以上を確保する必要があり、好ましくは40以上であることが望ましい。

試験例1～試験例3および比較例1～2は、混合物の流動性がスパイラル・フロー・レシオで40以上であるので、一例として射出成形が可能であった。

次に、第2実施例の変形例について説明する。

第2実施例では、第1、第2セパレータ120、130に、ポリフェニレンサルファイドを10～34wt%、黒鉛を60～80wt%、ケッテンブラックを1～10wt%、およびチップド炭素纖維を5～15wt%含ませた例について説明したが、第2実施例の変形例として第1、第2セパレータ120、130に、ポリフェニレンサルファイドを10～34wt%、黒鉛を65～80wt%、およびケッテンブラックを1～10wt%含ませることも可能である。

第2実施例の変形例によれば、第1、第2セパレータ120、130にポリフェニレンサルファイドを10～34wt%含ませることで、第1、第2セパレータ120、130を射出成形する際の成形性を高めるとともに、シール性に優れた第1、第2セパレータ120、130を得る。

これにより、第1、第2セパレータ120、130の生産性や精度をより一層高める。

加えて、ポリフェニレンサルファイドは耐熱性に優れた樹脂なので、第1、第2セパレータ120、130にポリフェニレンサルファイドを含ませることで、第1、第2セパレータ120、130の耐熱性を高める。このため、比較的高温の領域で使用する燃料電池への適用が可能になり、用途の拡大を図ることが可能

になる。

ここで、第2実施例の変形例において、ポリフェニレンサルファイドの含有量を10～34wt%に設定した理由は、第2実施例と同様である。

また、第1、第2セパレータ120、130に黒鉛を65～80wt%含ませることで、導電性を高める。

黒鉛の含有量を65～80wt%に設定した理由は、第2実施例と同様である。

すなわち、黒鉛の含有量が65wt%未満になると、黒鉛の含有量が少なすぎて、第1、第2セパレータ20、30の導電性を高めることが難しくなる。

一方、黒鉛の含有量が80wt%を超えると、黒鉛の含有量が多すぎて黒鉛を均一に分散することが難しく、押出成形やプレス成形が困難になる。

そこで、熱可塑性樹脂の含有量を65～80wt%に設定して、第1、第2セパレータ120、130の導電性を確保するとともに、成形性を確保することにした。

また、黒鉛の含有量を65wt%以上に確保することで、第1、第2セパレータ120、130の体積抵抗率($m\Omega \cdot cm$)を低減させて、第1、第2セパレータ120、130の導電性を十分に高める。

さらに、セパレータにケッテンブラックを1～10wt%含ませることで、導電性をより一層高める。

また、第2実施例の変形例において、ケッテンブラックの含有量を1～10wt%に設定した理由は、第2実施例と同様である。

第2実施例の変形例の第1、第2セパレータ120、130によれば、第2実施例と同様の効果を得る。

なお、前記第1～第2実施例では、電解質膜12として固体高分子電解質を使用した固体高分子型燃料電池10、110について説明したが、これに限らないで、その他の燃料電池に適用することも可能である。

また、前記第1～第2実施例では、第1セパレータ20、120及び第2セパレータ30、130を押し出し成形やプレス成形で連続的に成形した例について説明したが、これに限らないで、加熱プレス方法、射出成形方法やトランクスファー成形方法などのその他の製造方法で成形することも可能である。

トランスマルチ成形方法とは、成形材料をキャビティとは別のポット部に1ショット分入れ、プランジャーによって溶融状態の材料をキャビティに移送して成形する方法である。

さらに、前記第1～第2の実施例では、ケッテンブラックを、一例としてケッテン・ブラック・インターナショナル株式会社製（販売元：三菱化学株式会社）の「E C 6 0 0 J D」を使用した例について説明したが、これに限らないで、例えばケッテン・ブラック・インターナショナル株式会社製の「E C」を使用することも可能であり、その他のケッテンブラックを使用することも可能である。

また、ケッテンブラックと同様に導電性に優れたカーボンブラックであれば、ケッテンブラックに代えて使用することも可能である。

加えて、前記第2の実施例では、第1、第2セパレータ120、130に含まれたポリフェニレンサルファイドの粘性を20～80psiに設定した例について説明したが、ポリフェニレンサルファイドの粘性が80psiより高い場合には、可塑剤を使用して対応することも可能である。

さらに、前記第2の実施例では、粒径が100μmの黒鉛を使用する例について説明したが、黒鉛の粒径は100μmに限るものではなく、その他の粒径を使用することも可能である。

また、前記第2の実施例では、PAN系のチョップド炭素繊維を使用する例について説明したが、これに限らないで、例えばピッチ系のチョップド炭素繊維を使用することも可能である。

産業上の利用可能性

以上説明したように、本発明は、セパレータの接触面をシール性に優れた部位にすることでその生産性を高めることができるので、特に量産化が望まれる自動車用燃料電池の分野に有用である。

請求の範囲

1. 電解質膜に沿わせたアノード及びカソードを拡散層を介して両側から挟み込んだ燃料電池用セパレータであって、
エチレン・酢酸ビニル共重合体、エチレン・エチルアクリレート共重合体から選択した熱可塑性樹脂と、ケッテンブラック、黒鉛、アセチレンブラックの少なくとも一種から選択した炭素粒子との混合材で形成したことを特徴とする燃料電池用セパレータ。
2. 前記混合材は、前記熱可塑性樹脂の割合が14～20wt%、前記炭素粒子の割合が80～86wt%であることを特徴とする請求項1に記載の燃料電池用セパレータ。
3. 前記炭素粒子のうち、3～20wt%が前記ケッテンブラックであることを特徴とする請求項2に記載の燃料電池用セパレータ。
4. 前記混合材は、前記熱可塑性樹脂の割合が14～20wt%、前記炭素粒子の割合が70～83.5wt%、ガラス繊維又は炭素繊維の割合が2.5～10wt%であることを特徴とする請求項1に記載の燃料電池用セパレータ。
5. 熱可塑性樹脂をエチレン・酢酸ビニル共重合体、エチレン・エチルアクリレート共重合体から選択するとともに、炭素粒子をケッテンブラック、黒鉛、アセチレンブラックから少なくとも一種選択する工程と、
これらの選択した熱可塑性樹脂及び炭素粒子を混合して混合材を得る工程と、
この混合材を押出し機で押出し成形してシート材を得る工程と、
このシート材をプレス成形してガス流路溝を表面に成形する工程と、
このガス流路溝を成形したシート材を所定形状に切断して燃料電池用セパレータを得る工程と、
からなる燃料電池用セパレータの製造方法。

- 36 -

6. 電解質膜に沿わせたアノード及びカソードを拡散層を介して両側から挟み込む燃料電池用セパレータであつて、

ポリフェニレンサルファイドを10～34wt%、黒鉛を65～80wt%、およびケッテンブラックを1～10wt%含む混合物で形成したことを特徴とする燃料電池用セパレータ。

7. 前記混合物は、5～15wt%のチョップド炭素纖維を更に含み、前記混合物に含まれる黒鉛を60～80wt%としたことを特徴とする請求項6に記載の燃料電池用セパレータ。

8. 前記ポリフェニレンサルファイドは、粘性が20～80psiであることを特徴とする請求項7に記載の燃料電池用セパレータ。

1 / 12

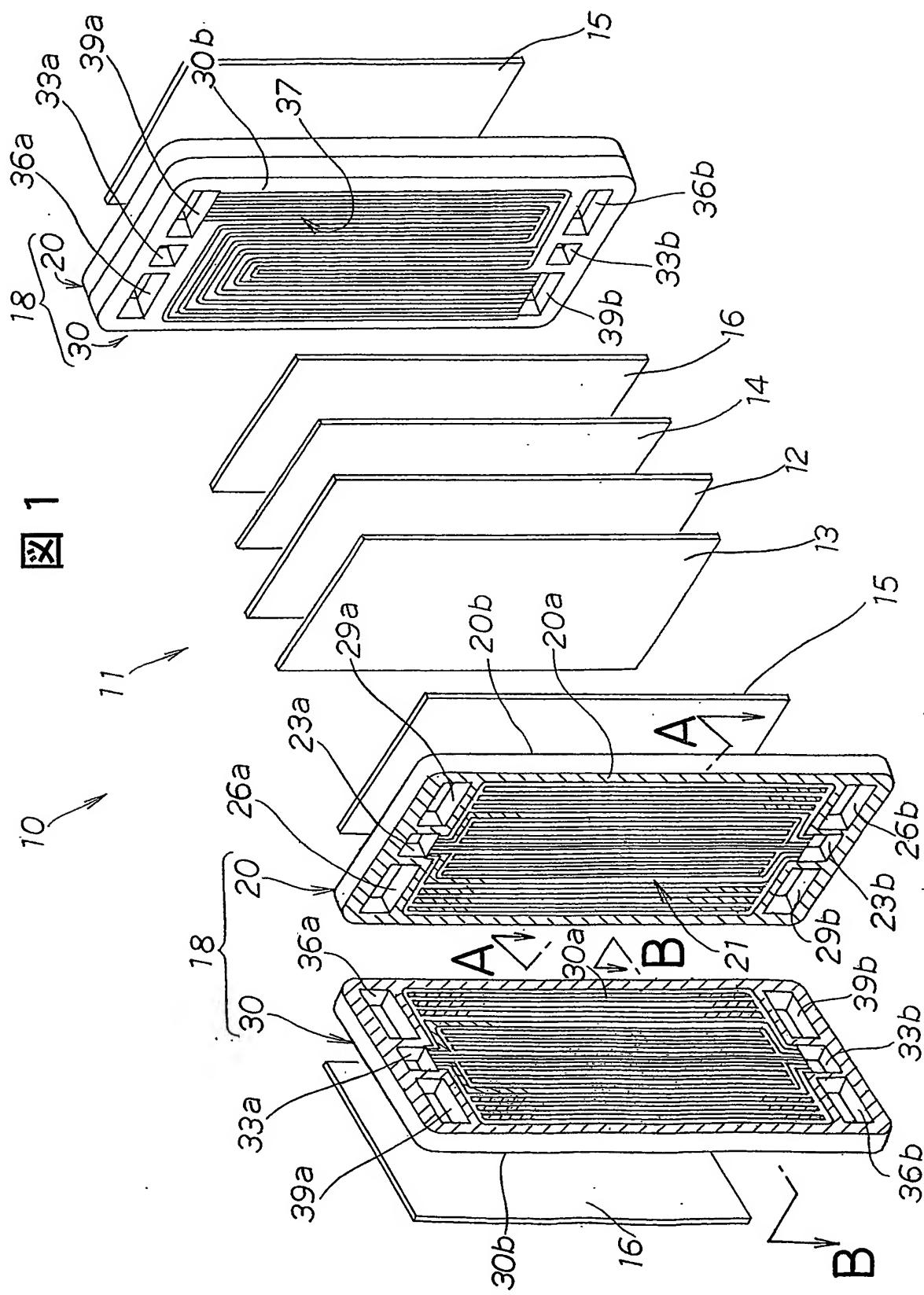


図 2

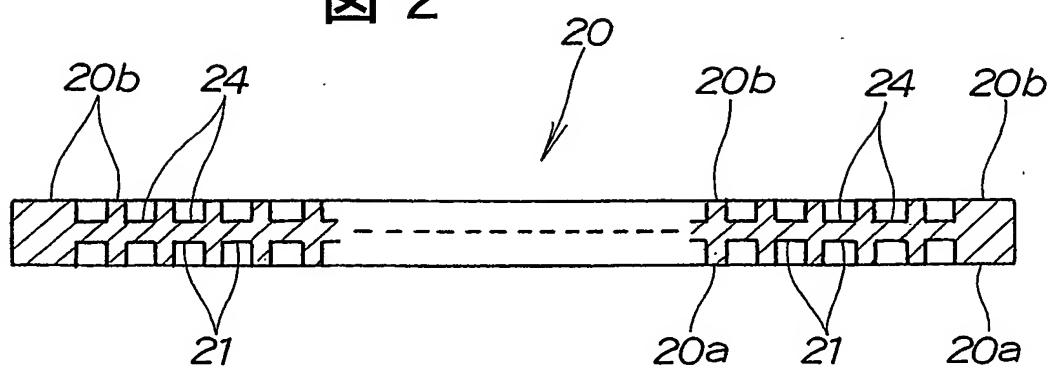
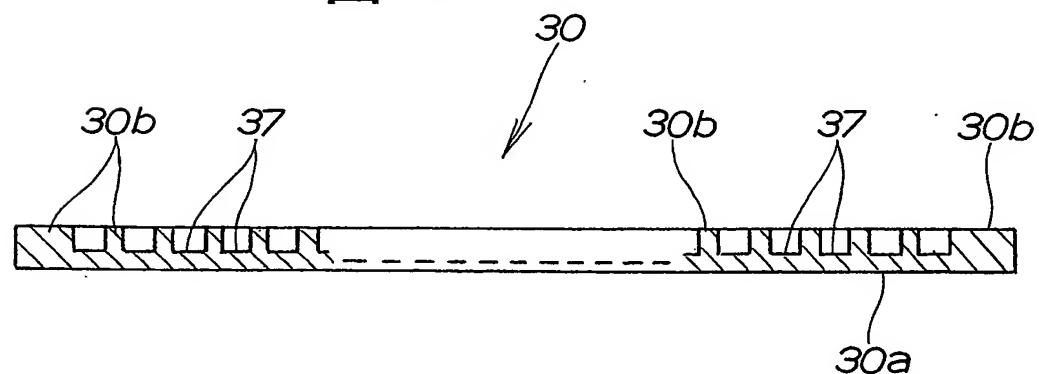


図 3



3/12

図 4

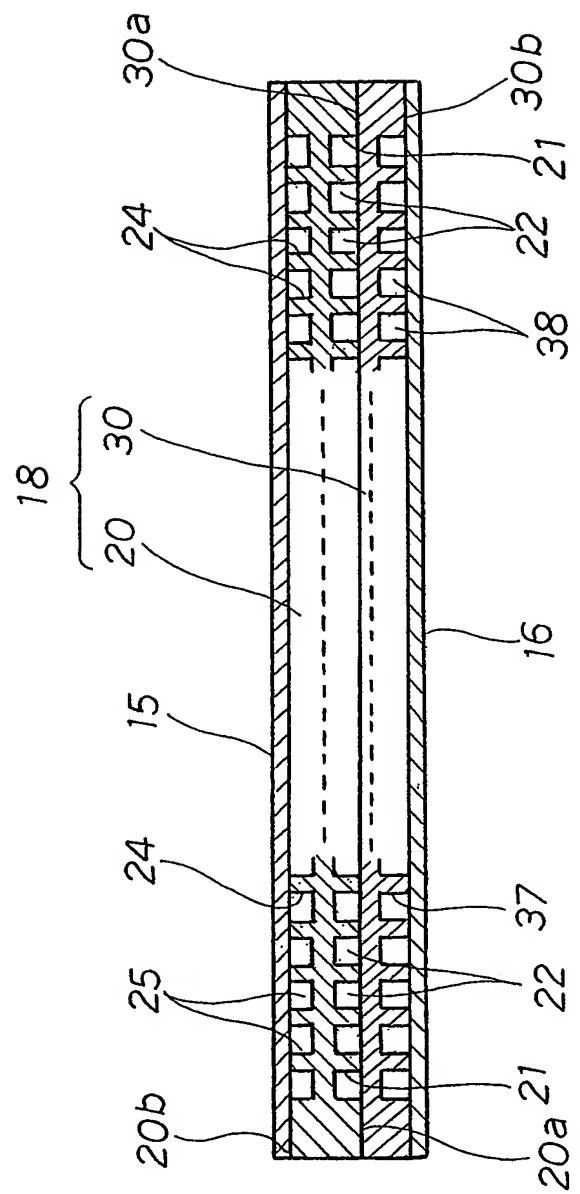
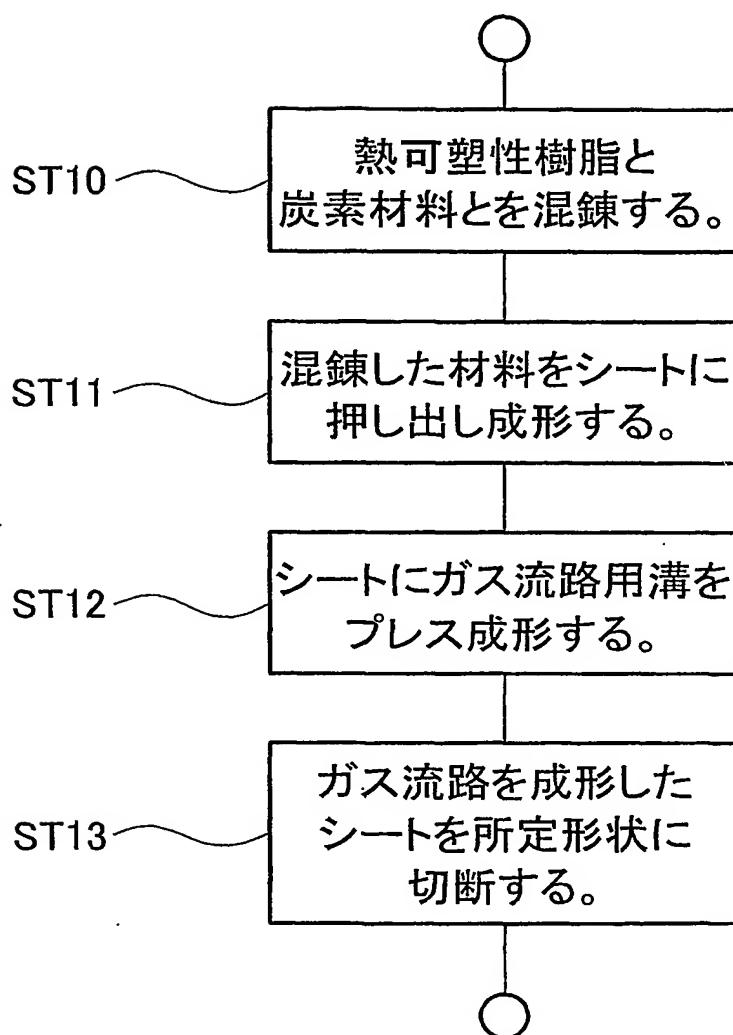


図 5



5/12

図 6A

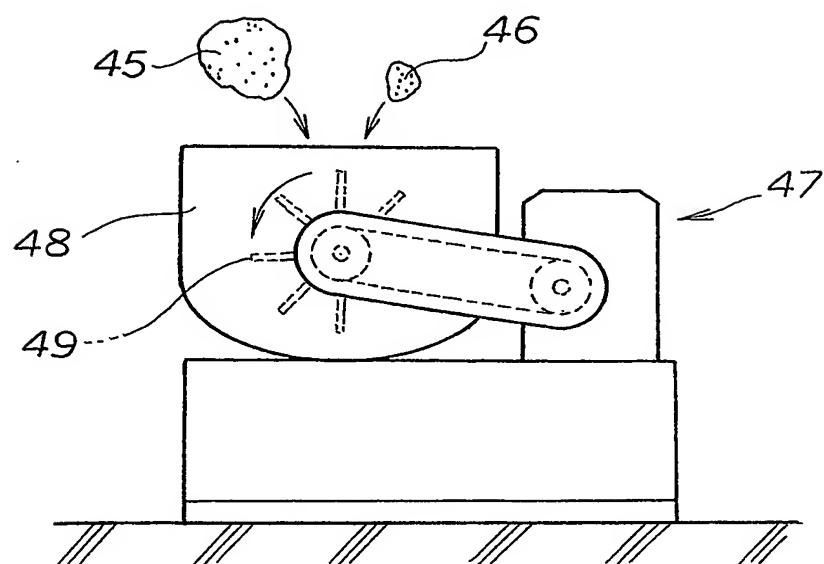
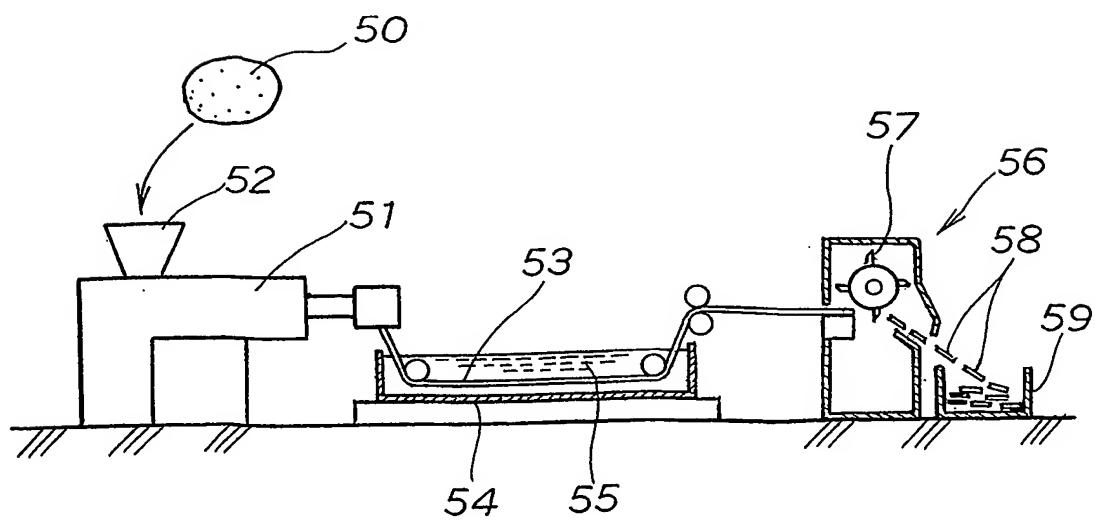
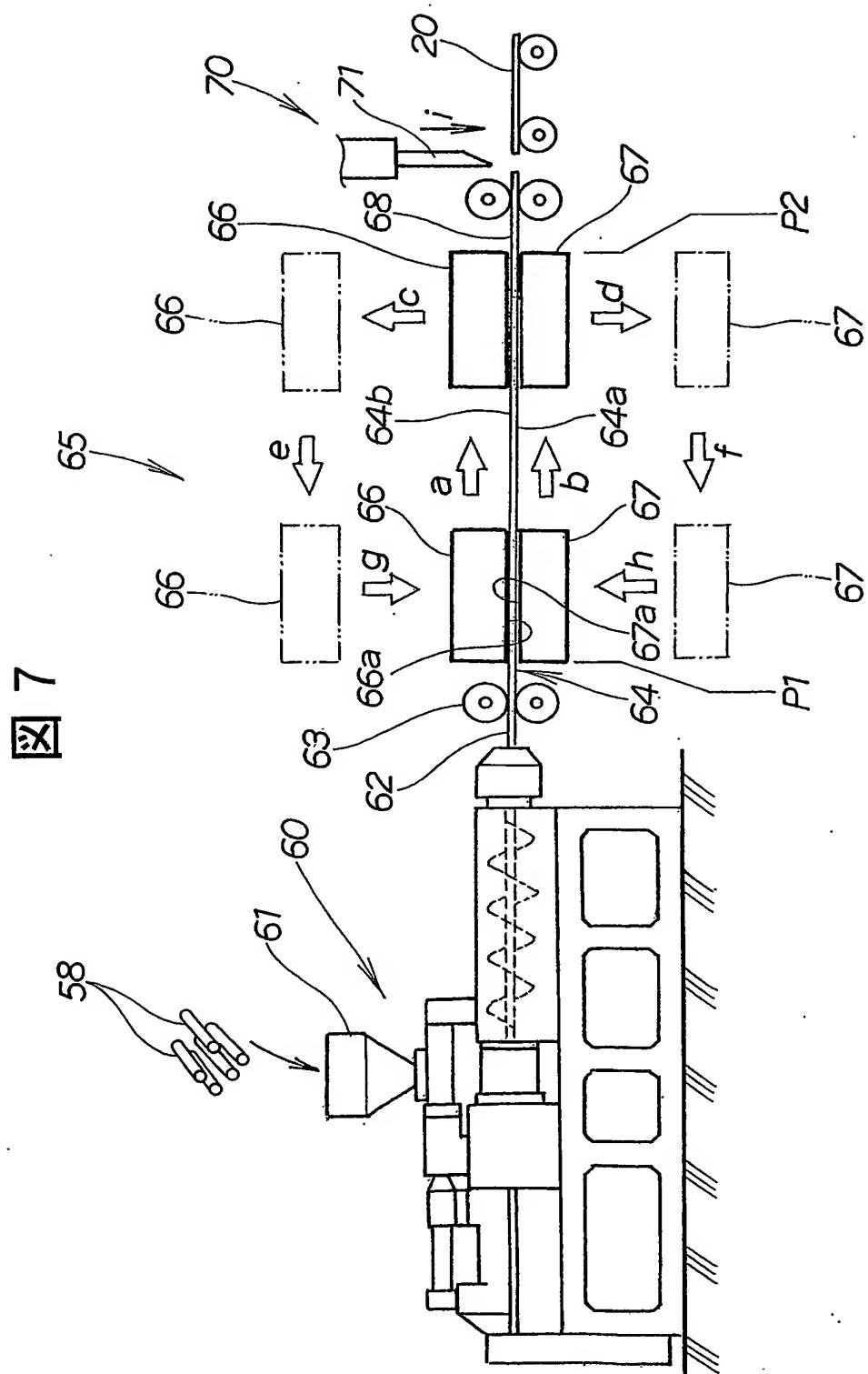
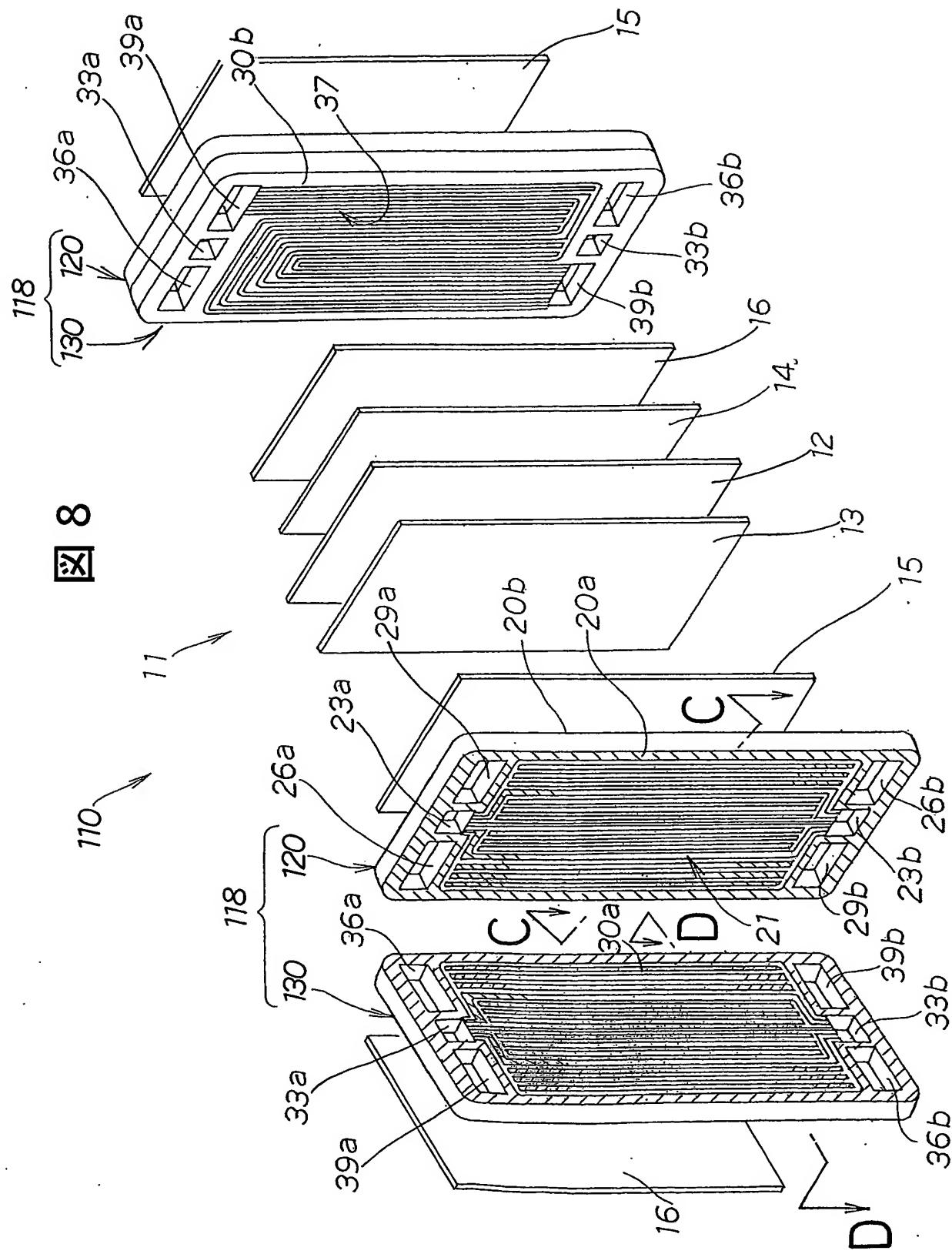


図 6B



6/12





8/12

図 9

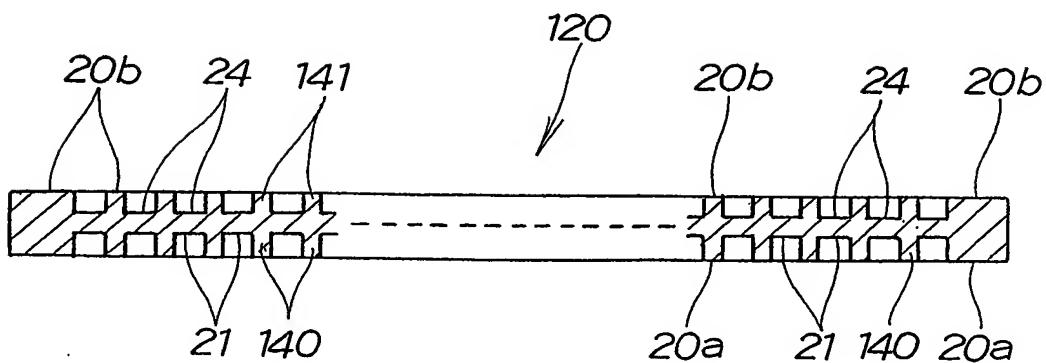
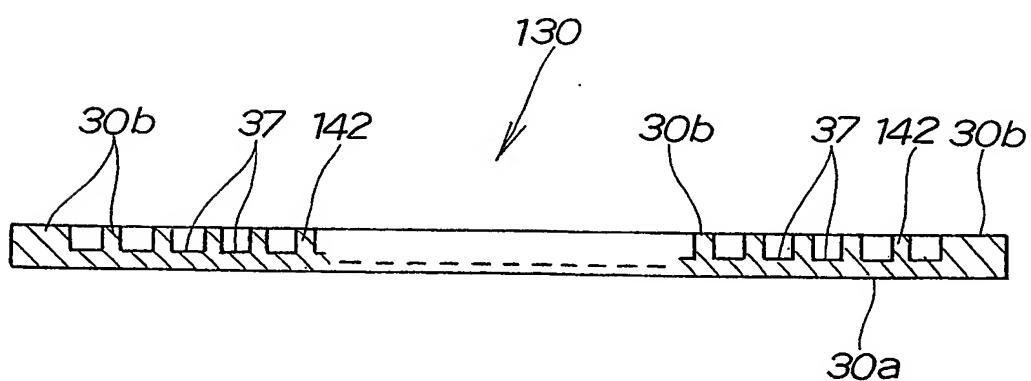
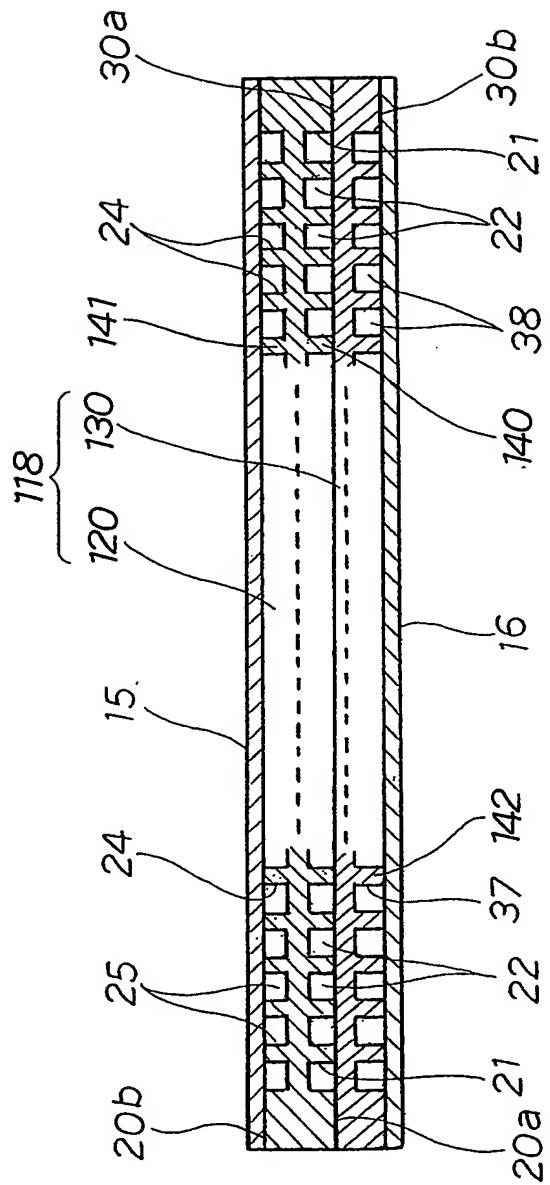


図 10



9/12

図 11



10/12

図 12

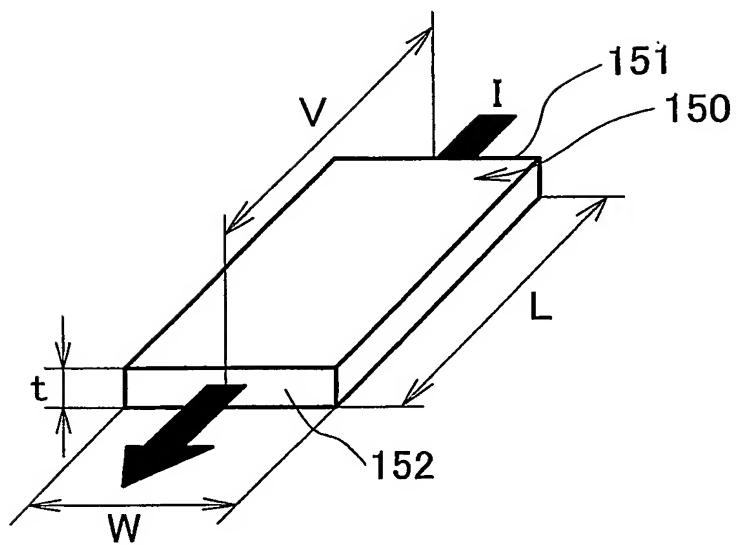


図 13

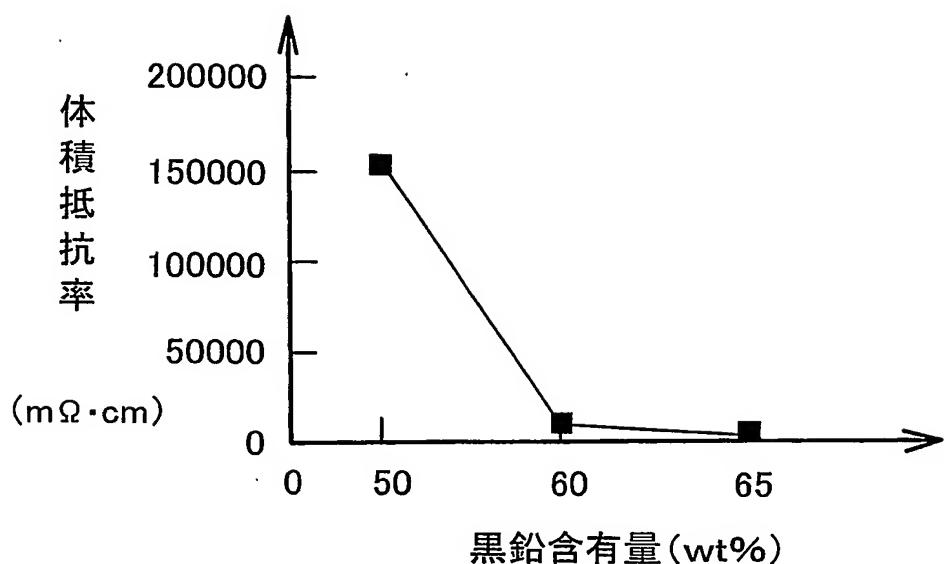


図 14

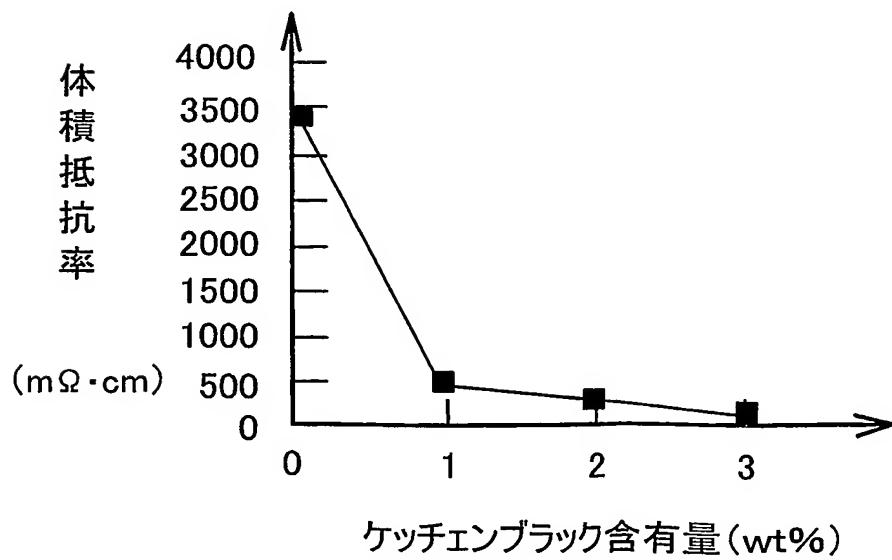
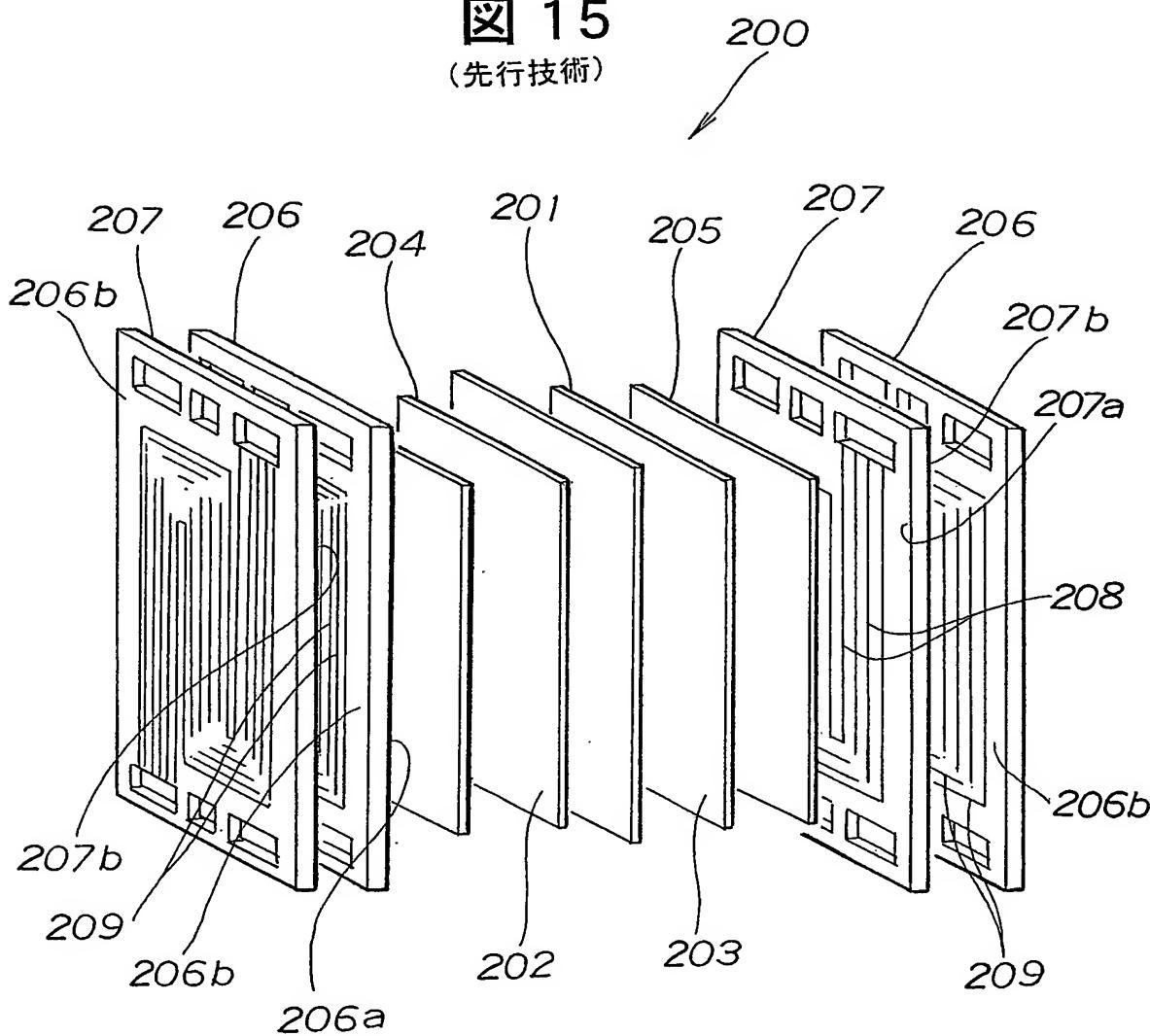


図 15
(先行技術)



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP03/10498

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ H01M8/02, H01M8/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl⁷ H01M8/02, H01M8/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2003
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2003 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
WPI/L

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| X | JP 2002-25571 A (Nisshinbo Industries, Inc.), 25 January, 2002 (25.01.02), Claims; Par. Nos. [0019] to [0032] (Family: none) | 1-4 |
| Y | JP 2002-198062 A (Aisin Seiki Co., Ltd.), 12 July, 2002 (12.07.02), Claims; Fig. 1 (Family: none) | 5 |
| X | JP 8-31231 A (Shin-Etsu Polymer Co., Ltd.), 02 February, 1996 (02.02.96), Claims; Par. Nos. [0006], [0013] to [0018] (Family: none) | 6 |
| Y | | 7-8 |

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

| | |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| * Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed | "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|

| | |
|------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------|
| Date of the actual completion of the international search 01 October, 2003 (01.10.03) | Date of mailing of the international search report 14 October, 2003 (14.10.03) |
|------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------|

| | |
|----------------------------------------------------------------|--------------------|
| Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office | Authorized officer |
|----------------------------------------------------------------|--------------------|

| | |
|---------------|---------------|
| Facsimile No. | Telephone No. |
|---------------|---------------|

INTERNATIONAL SEARCH REPORTInternational application No.
PCT/JP03/10498**C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| Y | JP 2002-100377 A (Kawasaki Steel Corp.), 05 April, 2002 (05.04.02), Claims; Par. No. [0015] (Family: none) | 7-8 |

INTERNATIONAL SEARCH REPORTInternational application No.
PCT/JP03/10498**Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. Claims Nos.:

because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. Claims Nos.:

because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. Claims Nos.:

because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

As described on (extra sheet), there must exist a special technical feature so linking a group of inventions or claims as to form a single general inventive concept in order that the group of inventions may satisfy the requirement of unity of invention. The international application contains two inventions: the inventions of claims 1-5, and the invention of claims 6-8.

1. As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee; this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.

No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORTInternational application No.
PCT/JP03/10498Continuation of Box No. II of continuation of first sheet (1)

There must exist a special technical feature so linking a group of inventions of claims as to form a single general inventive concept in order that the group of inventions may satisfy the requirement of unity of invention. The group of inventions of claims 1-5 are linked only by the technical feature "a separator for fuel cells made of a mixture material of a thermoplastic resin selected from ethylene-vinyl acetate copolymers and ethylene-ethyl acrylate copolymers and carbon particles selected from at least one of Ketjenblack, graphite, and acetylene black". The group of inventions of claims 6-8 are linked only by the technical feature "a separator for fuel cells made of a mixture material containing polyphenyl sulfide, graphite, and Ketjenblack".

The invention of claims 1-5 and the invention of claims 6-8 are not so linked as to form a single general inventive concept.

Therefore, the international application is considered to contain two inventions: the invention of claims 1-5 and the invention of claims 6-8.

A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int. Cl' H01M8/02, H01M8/10

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. Cl' H01M8/02, H01M8/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

| | |
|-------------|------------|
| 日本国実用新案公報 | 1922-1996年 |
| 日本国公開実用新案公報 | 1971-2003年 |
| 日本国登録実用新案公報 | 1994-2003年 |
| 日本国実用新案登録公報 | 1996-2003年 |

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L

C. 関連すると認められる文献

| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
|-----------------|-----------------------------------------------------------------------------|------------------|
| X | J P 2002-25571 A (日清紡績株式会社) 2002.01.25 【特許請求の範囲】、【0019】-【0032】 (ファミリーなし) | 1-4 |
| Y | J P 2002-198062 A (アイシン精機株式会社) 2002.07.12 【特許請求の範囲】、【図1】 (ファミリーなし) | 5 |
| | | |

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「I」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

01.10.03

国際調査報告の発送日 14.10.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官(権限のある職員)

前田 寛之

4 X 2930



電話番号 03-3581-1101 内線 3477

第I欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。
つまり、
2. 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第II欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

（特別ページ）に記載したように、請求の範囲に記載されている一群の発明が单一性の要件を満たすには、その一群の発明を单一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴の存在が必要であるところ、この国際出願の請求の範囲には、1-5と6-8に区分される2個の発明が記載されていると認める。

1. 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあつた。
 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかつた。

請求の範囲に記載されている一群の発明が单一性の要件を満たすには、その一群の発明を单一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴の存在が必要であるところ、請求の範囲1-5に記載されている一群の発明は、「エチレン・酢酸ビニル共重合体、エチレン・エチルアクリレート共重合体から選択した熱可塑性樹脂と、ケッテンブラック、黒鉛、アセチレンブラックの少なくとも一種から選択した炭素粒子との混合材で形成した燃料電池用セパレータ」という事項でのみ連関している。一方、請求の範囲6-8に記載されている一群の発明は、「ポリフェニレンサルファイド、黒鉛、ケッテンブラックを含む混合物で形成した燃料電池用セパレータ」という事項でのみ連関している。

してみると、請求の範囲1-5に記載されている発明と請求の範囲6-8に記載されている発明とは、单一の一般的発明概念を形成するように連関しているとは認められない。

よって、この国際出願の請求の範囲には、1-5と6-8に区分される2個の発明が記載されていると認めざるを得ない。